

SEALANT, METHOD FOR SEALING SEMICONDUCTOR OR THE LIKE, METHOD FOR PRODUCING SEMICONDUCTOR DEVICE, AND SEMICONDUCTOR DEVICE

Publication number: JP2003268239
Publication date: 2003-09-25
Inventor: OUCHI KATSUYA; FUJITA MASAYUKI; TSUMURA MANABU; IDE MASAHIITO
Applicant: KANEGAFUCHI CHEMICAL IND
Classification:
- **International:** C08L83/05; C08K5/00; C08L63/00; C08L101/00; H01L23/29; H01L23/31; C08L83/00; C08K5/00; C08L63/00; C08L101/00; H01L23/28; (IPC1-7): C08L83/05; C08K5/00; C08L63/00; C08L101/00; H01L23/29; H01L23/31
- **European:**
Application number: JP20020075292 20020319
Priority number(s): JP20020075292 20020319

Report a data error here

Abstract of JP2003268239

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a highly practical sealant which has high adhesiveness, low viscosity, and low temperature rapid curing performance; a method for sealing an electronic parts, an electric circuit, an electric contact or a semiconductor by using the sealant; a method for producing a semiconductor device; and a semiconductor device wherein a semiconductor is sealed by the sealant.
SOLUTION: The sealant comprises as essential components (A) an organic compound having at least two carbon-carbon double bonds reactive with an SiH group in one molecule, (B) a compound having at least two SiH groups in one molecule, and (D) an adhesive agent.
COPYRIGHT: (C)2003,JPO

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-268239

(P2003-268239A)

(43) 公開日 平成15年9月25日 (2003.9.25)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームト* (参考)
C 0 8 L 83/05		C 0 8 L 83/05	4 J 0 0 2
C 0 8 K 5/00		C 0 8 K 5/00	4 M 1 0 9
C 0 8 L 63/00		C 0 8 L 63/00	A
101/00		101/00	
H 0 1 L 23/29		H 0 1 L 23/30	R
審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全 36 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2002-75292 (P2002-75292)

(22) 出願日 平成14年3月19日 (2002.3.19)

(71) 出願人 000000941

鐘淵化学工業株式会社

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

(72) 発明者 大内 克哉

大阪府摂津市島飼西5丁目5-35-505

(72) 発明者 藤田 雅幸

大阪府摂津市島飼西5丁目5-32-102

(72) 発明者 津村 学

大阪府摂津市島飼西5丁目2-23浩然寮A
101

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 封止剤、半導体等の封止方法、半導体装置の製造方法、および半導体装置

(57) 【要約】

【課題】 高い接着性を示し、低粘度、低温速硬化性であり実用性の高い封止剤、それによって電子部品、電気回路、電気接点あるいは半導体を封止する電子部品、電気回路あるいは半導体等の封止方法あるいは半導体装置の製造方法、およびそれによって半導体が封止されてなる半導体装置を提供すること。

【解決手段】 (A) S i H基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物、(B) 1分子中に少なくとも2個のS i H基を含有する化合物、(D) 接着付与剤、を必須成分として含有することを特徴とする封止剤とすること。

【特許請求の範囲】

【請求項1】(A) SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物、(B) 1分子中に少なくとも2個のSiH基を含有する化合物、(C) ヒドロシリル化触媒、(D) 接着付与剤、を必須成分として含有することを特徴とする封止剤。

【請求項2】(D) 成分が、分子中にエポキシ基を含有する化合物である、請求項1に記載の封止剤。

【請求項3】さらに(E) 成分としてシラノール縮合触媒を含有する、請求項2に記載の封止剤。

【請求項4】(E) 成分のシラノール縮合触媒が、ボロン系化合物あるいは／およびアルミニウム系化合物あるいは／およびチタン系化合物である請求項3に記載の封止剤。

【請求項5】さらに(F) 成分としてカルボン酸類あるいは／および酸無水物類を含有する、請求項2乃至4のいずれか一項に記載の封止剤。

【請求項6】半導体を封止するために用いられる請求項1乃至5のいずれか一項に記載の封止剤。

【請求項7】請求項6に記載の封止剤からなるアンダーフィル。

【請求項8】請求項1乃至5のいずれか1項に記載の封止剤によって電子部品、電気回路、あるいは電気接点を封止することを特徴とする電子部品、電気回路、電気接点の封止方法。

【請求項9】請求項6に記載の封止剤あるいは請求項7に記載のアンダーフィルによって半導体を封止することを特徴とする半導体の封止方法。

【請求項10】請求項6に記載の封止剤あるいは請求項7に記載のアンダーフィルによって半導体を封止することを特徴とする半導体装置の製造方法。

【請求項11】請求項6に記載の封止剤あるいは請求項7に記載のアンダーフィルによって半導体が封止されてなる半導体装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は封止剤に関するものであり、更に詳しくは高い接着性を示し、低粘度、低温速硬化性であり実用性の高い封止剤、それによって電子部品、電気回路、電気接点あるいは半導体を封止する電子部品、電気回路あるいは半導体等の封止方法あるいは半導体装置の製造方法、およびそれによって半導体が封止されてなる半導体装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】封止剤、特に半導体用の封止剤としては、多官能エポキシ化合物、フェノールノボラック系硬化剤、無機質充填剤を主成分としたエポキシ樹脂組成物が、広く用いられている。また、近年、半導体パッケージの小型化要求等に伴い、TAB封止、フリップチップ

接続用のアンダーフィル封止等をはじめとして液状の封止剤が用いられるようになっており、これら液状封止剤には主としてエポキシ化合物、酸無水物系硬化剤、無機質充填剤を主成分としたエポキシ樹脂組成物が、広く用いられている。これらの封止剤に要求される基本的な特性は、はんだリフロー等の熱履歴によっても部品に不具合を生じさせない耐熱性、接着性等である。

【0003】一般にエポキシ樹脂組成物は硬化に高温、長時間を要し、半導体パッケージ等の製造が困難であり製造サイクルが長くなることがあるが、製造を容易にしサイクルを速くして製造コストを軽減するために、低温速硬化性が要求されている。また、液状封止剤では半導体の大型化、高密度化による流動性のさらなる向上等による狭い隙間への高速浸透性が求められている。

【0004】上記したような低温速硬化性、高速浸透性を改良するため、エポキシ樹脂において種々の改良が提案されている(特開平5-222270号公報、特開平6-5743号公報、特開平6-206982号公報、特開平7-165876号公報、特開平9-31161号公報、特開平9-246435号公報、特開平10-101906号公報、特開平11-21421号公報、特開平11-92549号公報、特開平11-140069号公報、特開平11-255864号公報、特開平11-256012号公報、特開平11-269250号公報、特開2000-3982号公報、特開2000-7891号公報、特開2000-53844号公報、特開2000-63630号公報)。

【0005】一方で、一般に硬化性が速いヒドロシリル化反応を硬化反応に用いた硬化性組成物も提案されている(特開昭50-100、特開平9-291214、特開平1-126336、特開平5-295270)。

【0006】さらに、封止剤には高い接着性が要求される。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明の目的は、高い接着性を示し、低粘度、低温速硬化性であり実用性の高い封止剤、それによって電子部品、電気回路、電気接点あるいは半導体を封止する電子部品、電気回路あるいは半導体等の封止方法あるいは半導体装置の製造方法、およびそれによって半導体が封止されてなる半導体装置を提供することである。

【0008】

【課題を解決するための手段】かかる課題を解決するために本発明者らは鋭意研究の結果、(A) SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物、(B) 1分子中に少なくとも2個のSiH基を含有する化合物、(D) 接着付与剤、を必須成分として含有することにより、上記課題を解決できることを見出し、本発明に至った。

【0009】すなわち、本発明は、(A) SiH基と反

応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物、(B)1分子中に少なくとも2個のSiH基を含有する化合物、(C)ヒドロシリル化触媒、(D)接着付与剤、を必須成分として含有することを特徴とする封止剤(請求項1)であり、(D)成分が、分子中にエポキシ基を含有する化合物である、請求項1に記載の封止剤(請求項2)であり、さらに

(E)成分としてシラノール縮合触媒を含有する、請求項2に記載の封止剤(請求項3)であり、(E)成分のシラノール縮合触媒が、ボロン系化合物あるいは／およびアルミニウム系化合物あるいは／およびチタン系化合物である請求項3に記載の封止剤(請求項4)であり、さらに(F)成分としてカルボン酸類あるいは／および酸無水物類を含有する、請求項2乃至4のいずれか一項に記載の封止剤(請求項5)であり、半導体を封止するために用いられる請求項1乃至5のいずれか一項に記載の封止剤(請求項6)であり、請求項6に記載の封止剤からなるアンダーフィル(請求項7)であり、請求項1乃至5のいずれか1項に記載の封止剤によって電子部品、電気回路、あるいは電気接点を封止することを特徴とする電子部品、電気回路、電気接点の封止方法(請求項8)であり、請求項6に記載の封止剤あるいは請求項7に記載のアンダーフィルによって半導体を封止することを特徴とする半導体の封止方法(請求項9)であり、請求項6に記載の封止剤あるいは請求項7に記載のアンダーフィルによって半導体を封止することを特徴とする半導体装置の製造方法(請求項10)であり、請求項6に記載の封止剤あるいは請求項7に記載のアンダーフィルによって半導体が封止されてなる半導体装置(請求項11)である。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。

(A)成分)まず、本発明における(A)成分について説明する。

【0011】(A)成分はSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物であれば特に限定されない。有機化合物としてはポリシロキサン-有機ブロックコポリマーやポリシロキサン-有機グラフトコポリマーのようなシロキサン単位(Si-O-Si)を含むものではなく、構成元素としてC、H、N、O、S、ハロゲンのみを含むものであることが好ましい。シロキサン単位を含むもの場合は、ガス透過性やはじきの問題がある。

【0012】SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合の結合位置は特に限定されず、分子内のどこに存在してもよい。

【0013】(A)成分の有機化合物は、有機重合体系の化合物と有機単量体系化合物に分類できる。

【0014】有機重合体系化合物としては例えば、ポリエーテル系、ポリエステル系、ポリアリレート系、ポリ

カーボネート系、飽和炭化水素系、不飽和炭化水素系、ポリアクリル酸エステル系、ポリアミド系、フェノール-ホルムアルデヒド系(フェノール樹脂系)、ポリイミド系の化合物を用いることができる。

【0015】また有機単量体系化合物としては例えば、フェノール系、ビスフェノール系、ベンゼン、ナフタレン等の芳香族炭化水素系：直鎖系、脂環系等の脂肪族炭化水素系：複素環系の化合物およびこれらの混合物等が挙げられる。

10 【0016】(A)成分のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合としては特に限定されないが、下記一般式(III)

【0017】

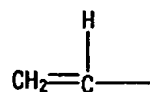
【化1】



(式中R³は水素原子あるいはメチル基を表す。)で示される基が反応性の点から好適である。また、原料の入手の容易さからは、

【0018】

【化2】



示される基が特に好ましい。

30 【0019】(A)成分のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合としては、下記一般式(IV)

【0020】

【化3】



(式中R⁴は水素原子あるいはメチル基を表す。)で示される脂環式の基が、硬化物の耐熱性が高いという点から好適である。また、原料の入手の容易さからは、

【0021】

【化4】



示される脂環式の基が特に好ましい。

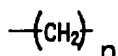
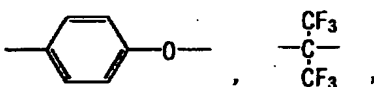
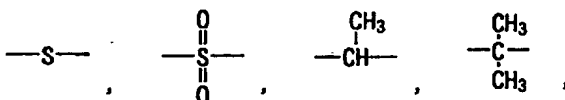
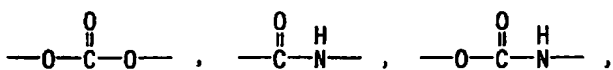
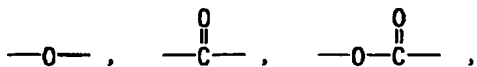
【0022】SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合は(A)成分の骨格部分に直接結合していてもよく、2価以上の置換基を介して共有結合していても良

い。2価以上の置換基としては炭素数0～10の置換基
であれば特に限定されないが、構成元素としてC、H、
N、O、S、およびハロゲンのみを含むものが好まし *

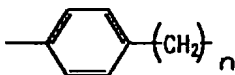
*い。これらの置換基の例としては、

【0023】

【化5】



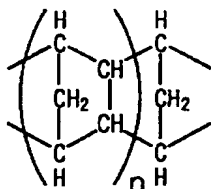
(nは1～10の数を表す。),



(nは0～4の数を表す。),

【0024】

【化6】



(nは0～4の数を表す。)

が挙げられる。また、これらの2価以上の置換基の2つ
以上が共有結合によりつながって1つの2価以上の置換
基を構成していてもよい。

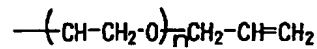
【0025】以上のような骨格部分に共有結合する基の
例としては、ビニル基、アリル基、メタリル基、アクリ
ル基、メタクリル基、2-ヒドロキシ-3-(アリルオ
キシ)プロピル基、2-アリルフェニル基、3-アリル
フェニル基、4-アリルフェニル基、2-(アリルオキ
シ)フェニル基、3-(アリルオキシ)フェニル基、4
-(アリルオキシ)フェニル基、2-(アリルオキシ)
エチル基、2, 2-ビス(アリルオキシメチル)ブチル
基、3-アリルオキシ-2, 2-ビス(アリルオキシメ
チル)プロピル基、

40

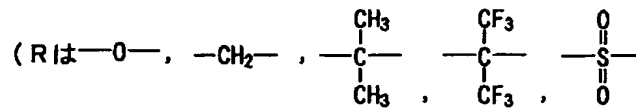
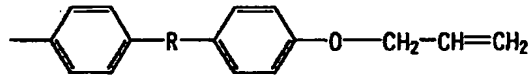
【0026】

【化7】

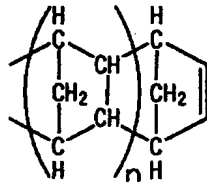
7



(n は $5 \geq n \geq 2$ を満足する数を表す。),



から選ばれる2価の基を表す。),



(n は0~4の数を表す。)

が挙げられる。

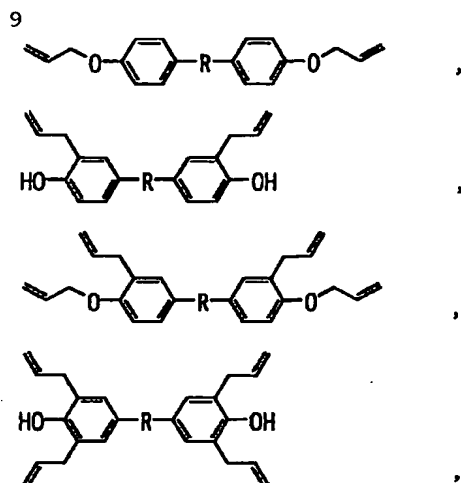
【0027】(A)成分の具体的な例としては、ジアリルフタレート、トリアリルトリメリテート、ジエチレングリコールビスアリルカーボネート、トリメチロールプロパンジアリルエーテル、ペンタエリスリトールトリアリルエーテル、1,1,2,2-テトラアリロキシエタン、ジアリリデンペンタエリスリット、トリアリルシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート、1,2,4-トリビニルシクロヘキサン、ジビニルベンゼン類(純

度50~100%のもの、好ましくは純度80~100%のもの)、ジビニルピフェニル、1,3-ジイソプロベニルベンゼン、1,4-ジイソプロベニルベンゼン、およびそれらのオリゴマー、1,2-ポリブタジエン(1,2比率10~100%のもの、好ましくは1,2比率50~100%のもの)、ノボラックフェノールのアリルエーテル、アリル化ポリフェニレンオキサイド、

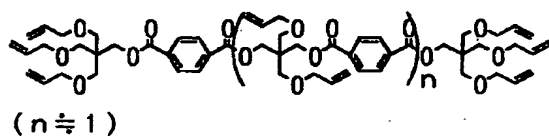
【0028】

【化8】

(6)



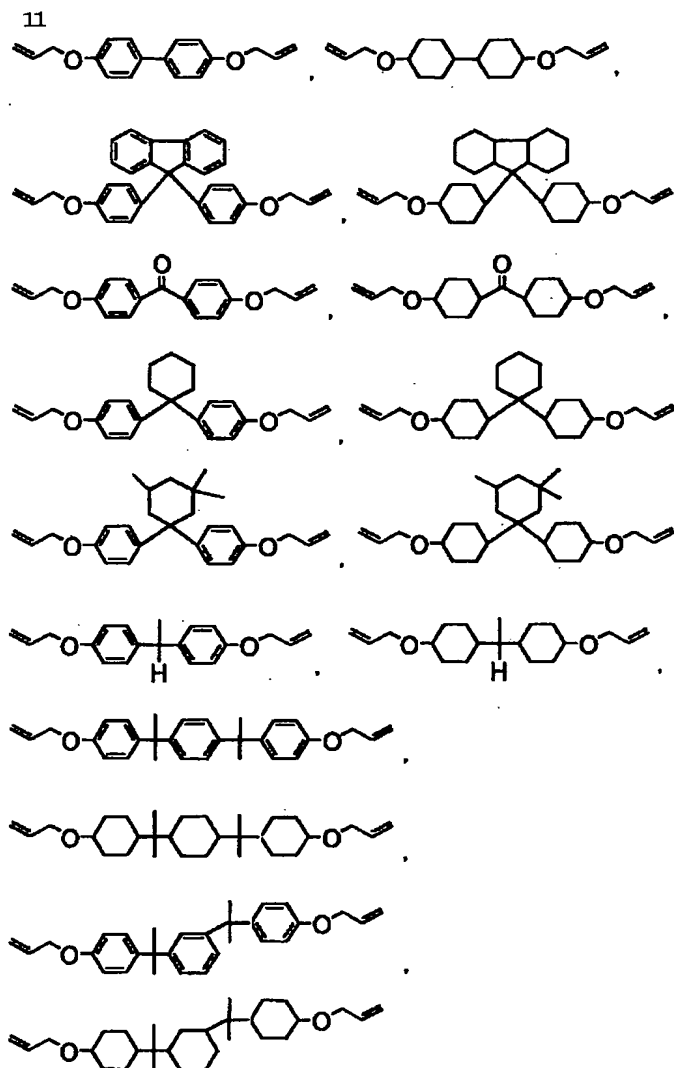
(Rは—O—, —CH₂—, $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{C}- \\ | \\ \text{CH}_3 \end{array}$, $\begin{array}{c} \text{CF}_3 \\ | \\ -\text{C}- \\ | \\ \text{CF}_3 \end{array}$, $\begin{array}{c} \text{O} \\ || \\ -\text{S}- \\ || \\ \text{O} \end{array}$ から選ばれる2価の基を表す。)



【0029】

【化9】

(7)



の他、従来公知のエポキシ樹脂のグリシジル基の一部あるいは全部をアリル基に置き換えたもの等が挙げられる。

【0030】(A)成分としては、上記のように骨格部分とアルケニル基とに分けて表現しがたい、低分子量化合物も用いることができる。これらの低分子量化合物の具体例としては、ブタジエン、イソプレン、オクタジエン、デカジエン等の脂肪族鎖状ポリエン化合物系、シクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、シクロオクタジエン、ジシクロペンタジエン、トリシクロペンタジエン、ノルボルナジエン等の脂肪族環状ポリエン化合物系、ビニルシクロペンテン、ビニルシクロヘキセン等の置換脂肪族環状オレフィン化合物系等が挙げられる。

【0031】(A)成分としては、耐熱性をより向上し得るという観点からは、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を(A)成分1gあたり0.001mol以上含有するものが好ましく、1gあたり0.005mol以上含有するものがより好ましく、0.008mol

以上含有するものがさらに好ましい。

【0032】(A)成分のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合の数は、平均して1分子当たり少なくとも2個あればよいが、力学強度をより向上したい場合には2を越えることが好ましく、3個以上であることがより好ましい。(A)成分のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合の数が1分子内当たり1個以下の場合には、(B)成分と反応してもグラフト構造となるのみで架橋構造とならない。

【0033】(A)成分としては反応性が良好であるという観点からは、1分子中にビニル基を1個以上含有していることが好ましく、1分子中にビニル基を2個以上含有していることがより好ましい。また貯蔵安定性が良好となりやすいという観点からは、1分子中にビニル基を6個以下含有していることが好ましく、1分子中にビニル基を4個以下含有していることがより好ましい。

【0034】(A)成分としては、力学的耐熱性が高いという観点および原料液の糸引き性が少なく成形性、取

13

扱い性が良好であるという観点からは、分子量が900未満のものが好ましく、700未満のものがより好ましく、500未満のものがさらに好ましい。

【0035】(A)成分としては、他の成分との均一な混合、および良好な作業性を得るためには、粘度としては23℃において1000ポイズ未満のものが好ましく、300ポイズ未満のものがより好ましく、30ポイズ未満のものがさらに好ましい。粘度はE型粘度計によって測定することができる。

【0036】(A)成分としては、着色特に黄変の抑制の観点からはフェノール性水酸基および／あるいはフェノール性水酸基の誘導体を有する化合物の含有量が少ないものが好ましく、フェノール性水酸基および／あるいはフェノール性水酸基の誘導体を有する化合物を含まないものが好ましい。本発明におけるフェノール性水酸基とはベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環等に例示される芳香族炭化水素核に直接結合した水酸基を示し、フェノール性水酸基の誘導体とは上述のフェノール性水酸基の水素原子をメチル基、エチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基等のアルケニル基、アセトキシ基等のアシル基等により置換された基を示す。

【0037】また、複屈折率が低い、光弾性係数が低い等のように光学特性が良好であるとともに耐候性が良好であるという観点からは、芳香環の(A)成分中の成分重量比が50重量%以下であるものが好ましく、40重量%以下のものがより好ましく、30重量%以下のものがさらに好ましい。最も好ましいのは芳香族炭化水素環を含まないものである。

【0038】得られる硬化物の着色が少なく、光学的透明性が高く、耐光性が高いという観点からは、(A)成分としてはビニルシクロヘキセン、ジシクロペンタジエン、トリアリルイソシアヌレート、2,2-ビス(4-ヒドロキシシクロヘキシル)プロパンのジアリルエーテル、1,2,4-トリビニルシクロヘキサンのジアリルエーテル、1,2,4-トリビニルシクロヘキサンが特に好ましい。

14

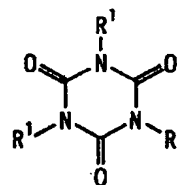
【0039】(A)成分としてはその他の反応性基を有していてもよい。この場合の反応性基としては、エポキシ基、アミノ基、ラジカル重合性不飽和基、カルボキシ基、イソシアネート基、ヒドロキシ基、アルコキシシリル基等が挙げられる。これらの官能基を有している場合には得られる硬化性組成物の接着性が高くなりやすく、得られる硬化物の強度が高くなりやすい。接着性が高くなりうるという点からは、これらの官能基のうちエポキシ基が好ましい。また、得られる硬化物の耐熱性が高くなりやすいという点においては、反応性基を平均して1分子中に1個以上有していることが好ましい。

【0040】(A)成分は、単独もしくは2種以上のものを混合して用いることが可能である。

【0041】(A)成分としては、耐熱性および透明性が高いという観点からは、下記一般式(I)

【0042】

【化10】



(I)

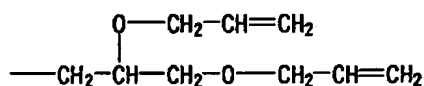
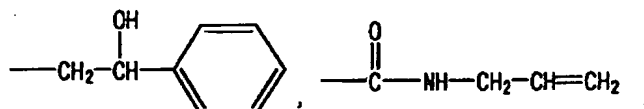
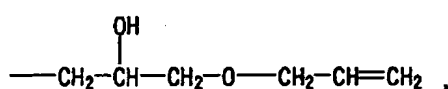
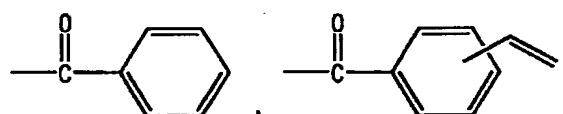
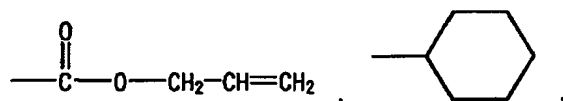
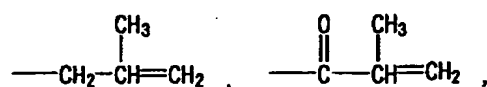
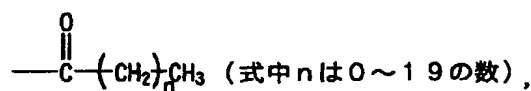
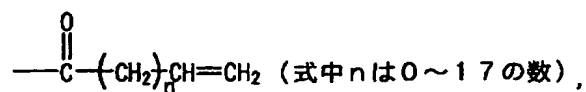
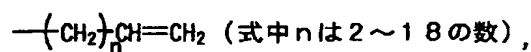
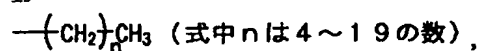
(式中R¹は炭素数1～50の一価の有機基を表し、それぞれのR¹は異なっても同一であってもよい。)で表される化合物が好ましい。

【0043】上記一般式(I)のR¹としては、得られる硬化物の耐熱性がより高くなりうるという観点からは、炭素数1～20の一価の有機基であることが好ましく、炭素数1～10の一価の有機基であることがより好ましく、炭素数1～4の一価の有機基であることがさらに好ましい。これらの好ましいR¹の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、フェニル基、ベンジル基、フェネチル基、ビニル基、アリル基、グリシジル基、

【0044】

【化11】

15

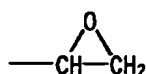


等が挙げられる。

【0045】上記一般式(I)のR¹としては、得られる硬化物の各種材料との接着性が良好になりうるという観点からは、3つのR¹のうち少なくとも1つがエポキシ基を一つ以上含む炭素数1～50の一価の有機基であることが好ましく、

【0046】

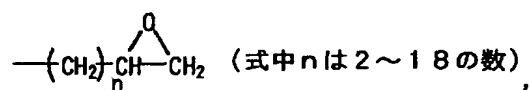
【化12】



で表されるエポキシ基を1個以上含む炭素数1～50の一価の有機基であることがより好ましい。これらの好ましいR¹の例としては、グリシジル基、

【0047】

【化13】

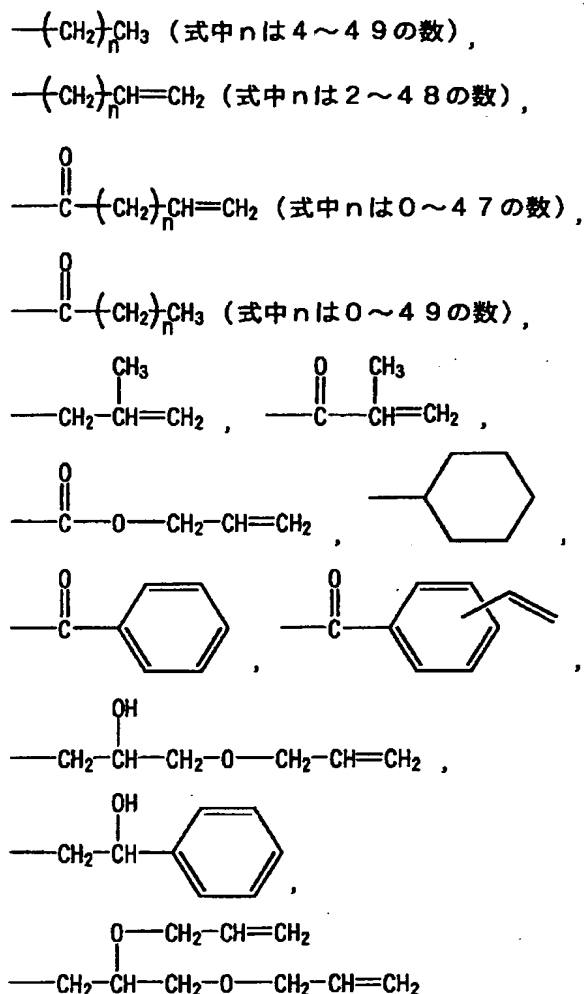


等が挙げられる。

【0048】上記一般式(I)のR¹としては、得られる硬化物の化学的な熱安定性が良好になりうるという観点からは、2個以下の酸素原子を含みかつ構成元素としてC、H、Oのみを含む炭素数1～50の一価の有機基であることが好ましく、炭素数1～50の一価の炭化水素基であることがより好ましい。これらの好ましいR¹の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、フェニル基、ベンジル基、フェネチル基、ビニル基、アリル基、グリシジル基、

【0049】

【化14】

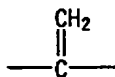


等が挙げられる。

【0050】上記一般式(I)のR¹としては、反応性が良好になるという観点からは、3つのR¹のうち少なくとも1つが

【0051】

【化15】



で表される基を1個以上含む炭素数1～50の一価の有機基であることが好ましく、下記一般式(II I)

【0052】

【化16】

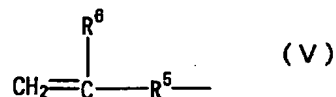


(式中R³は水素原子あるいはメチル基を表す。)で表される基を1個以上含む炭素数1～50の一価の有機基

であることがより好ましく、3つのR¹のうち少なくとも2つが下記一般式(V)

【0053】

【化17】



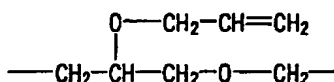
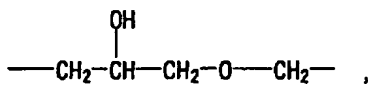
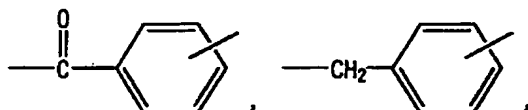
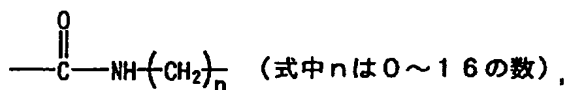
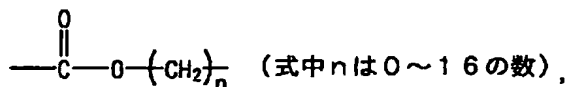
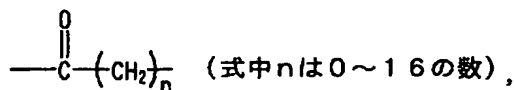
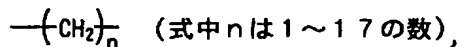
40 (式中R⁵は直接結合あるいは炭素数1～48の二価の有機基を表し、R⁶は水素原子あるいはメチル基を表す。)で表される有機化合物(複数のR⁵およびR⁶はそれぞれ異なっても同一であってもよい。)であることがさらに好ましい。

【0054】上記一般式(V)のR⁵は、直接結合あるいは炭素数1～48の二価の有機基であるが、得られる硬化物の耐熱性がより高くなりうるという観点からは、直接結合あるいは炭素数1～20の二価の有機基であることが好ましく、直接結合あるいは炭素数1～10の二価の有機基であることがより好ましく、直接結合あるい

は炭素数1~4の二価の有機基であることがさらに好ましい。これらの好ましいR'の例としては、

【0055】

【化18】

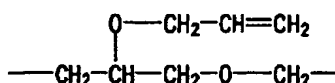
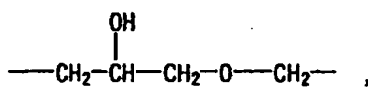
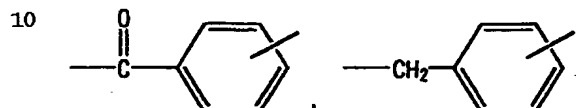
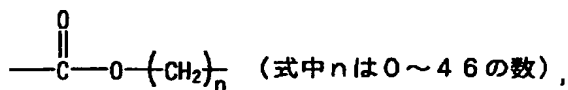
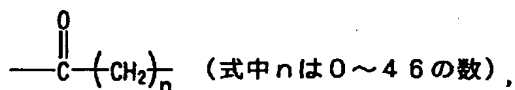
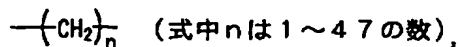


等が挙げられる。

【0056】上記一般式(V)のR'としては、得られる硬化物の化学的な熱安定性が良好になりうるという観点からは、直接結合あるいは2つ以下の酸素原子を含みかつ構成元素としてC、H、Oのみを含む炭素数1~48の二価の有機基であることが好ましく、直接結合あるいは炭素数1~48の二価の炭化水素基であることがより好ましい。これらの好ましいR'の例としては、

【0057】

【化19】



20 が挙げられる。

【0058】上記一般式(V)のR'は、水素原子あるいはメチル基であるが、反応性が良好であるという観点からは、水素原子が好ましい。

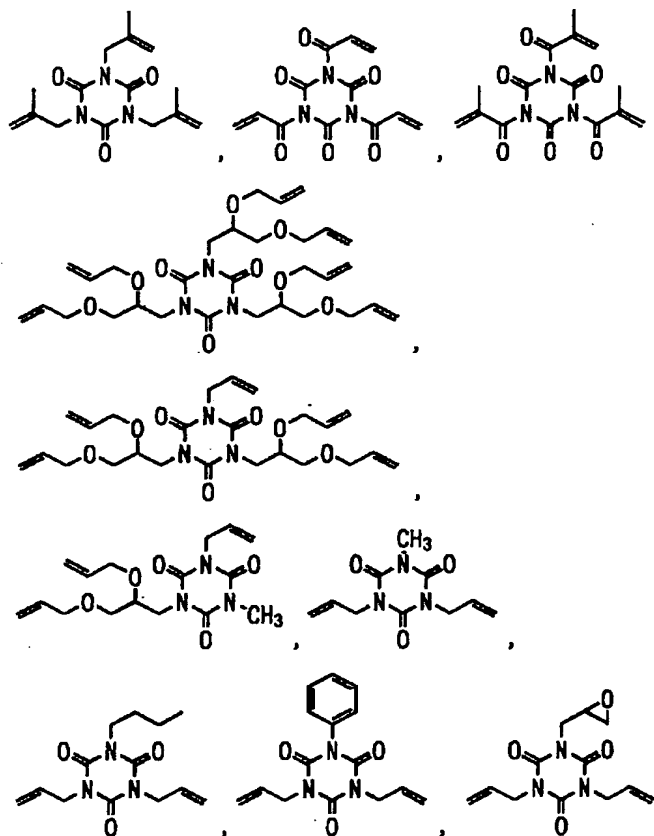
【0059】ただし、上記のような一般式(I)で表される有機化合物の好ましい例においても、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有することは必要である。耐熱性をより向上し得るという観点からは、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に3個以上含有する有機化合物であることがより好ましい。

30 【0060】以上のような一般式(I)で表される有機化合物の好ましい具体例としては、トリアリルイソシアヌレート、

【0061】

【化20】

21



22

等が挙げられる。

【0062】また、(B)成分と良好な相溶性を有するという観点、および(A)成分の揮発性が低くなり得られる封止剤からのアウトガスの問題が生じ難いという観点からは、(A)成分の例として上記したような、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物から選ばれた1種以

上の化合物と、SiH基を有する鎖状及び／又は環状オルガノポリシロキサン(β)との反応物も好ましい。

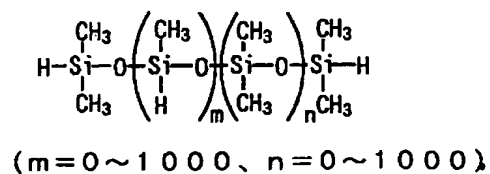
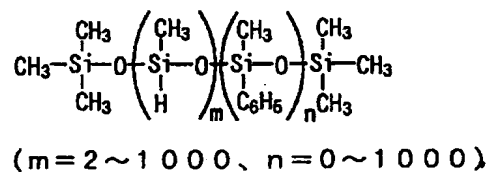
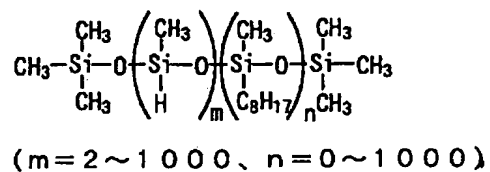
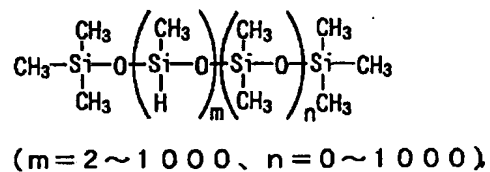
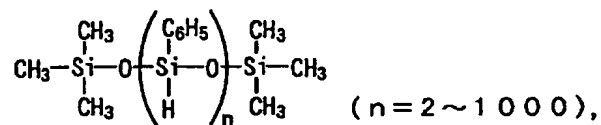
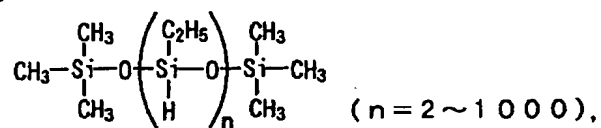
((β)成分) (β)成分は、SiH基を有する鎖状及び／又は環状のポリオルガノシロキサンである。

【0063】具体的には、例えば

【0064】

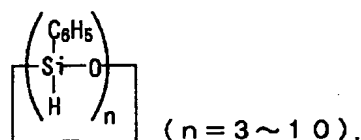
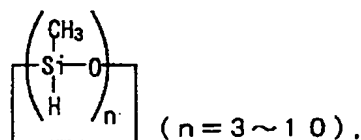
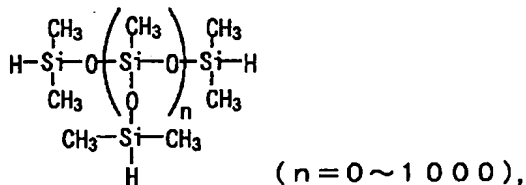
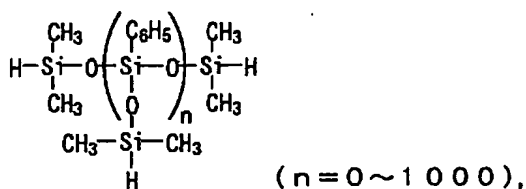
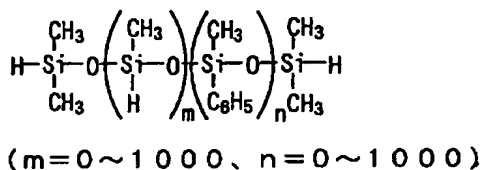
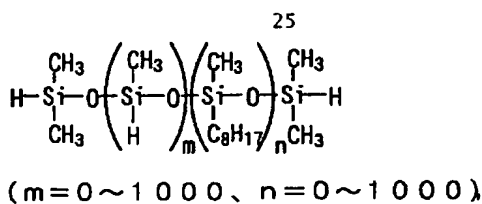
【化21】

30



[0065]

[化22]

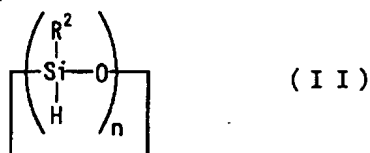


が挙げられる。

【0066】ここで、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物との相溶性が良くなりやすいという観点から、下記一般式(II)

【0067】

【化23】



(式中、R²は炭素数1~6の有機基を表し、nは3~10の数を表す。)で表される、1分子中に少なくとも3個のSiH基を有する環状ポリオルガノシロキサンが

好ましい。

【0068】一般式(II)で表される化合物中の置換基R²は、C、H、Oから構成されるものであることが好ましく、炭化水素基であることがより好ましく、メチル基であることがさらに好ましい。

【0069】入手容易性等から、1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサンであることが好ましい。

【0070】上記したような各種(β)成分は単独もしくは2種以上のものを混合して用いることが可能である。

(SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分の反応)次に、本発明の(A)成分として、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分をヒドロシリル化反応して得ることができる化合物を用いる場合、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分とのヒドロシリル化反応に関して説明する。

【0071】尚、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分をヒドロシリル化反応すると、本発明の(A)成分を含む複数の化合物の混合物が得られることがあるが、そこから(A)成分を分離することなく混合物のままで用いて本発明の硬化性組成物を作成することもできる。

【0072】SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分をヒドロシリル化反応させる場合、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分の混合比率は、特に限定されないが、反応中のゲル化が抑制できるという点においては、一般に、混合するSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物中のSiH基との反応性を有する炭素-炭素二重結合の総数(X)と、混合する

(β)成分中のSiH基の総数(Y)との比が、X/Y ≥ 2であることが好ましく、X/Y ≥ 3であることがより好ましい。また(A)成分の(B)成分との相溶性がよくなりやすいという点からは、10 ≥ X/Yであることが好ましく、5 ≥ X/Yであることがより好ましい。

【0073】SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分をヒドロシリル化反応させる場合には適当な触媒を用いてもよい。触媒としては、例えば次のようなものを用いることができる。白金の単体、アルミナ、シリカ、カーボンブラック等の担体に固体白金を担持させたもの、塩化白金酸、塩化白金酸とアルコール、アルデヒド、ケトン等との錯体、白金-オレフィン錯体(例え

ば、 $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}_2)_2(\text{PPh}_3)_2$ 、 $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}_2)_2\text{Cl}_2$ 、白金-ビニルシロキサン錯体(例えば、 $\text{Pt}(\text{ViMe}_2\text{SiOSiMe}_2\text{Vi})_n$ 、 $\text{Pt}[(\text{MeViSiO})_m]_n$)、白金-ホスフィン錯体(例えば、 $\text{Pt}(\text{PPh}_3)_4$ 、 $\text{Pt}(\text{PBU}_3)_4$)、白金-ホスファイト錯体(例えば、 $\text{Pt}[\text{P}(\text{OPh})_3]_4$ 、 $\text{Pt}[\text{P}(\text{OBU})_3]_4$) (式中、Meはメチル基、Buはブチル基、Viはビニル基、Phはフェニル基を表し、n、mは、整数を示す。) 、ジカルボニルジクロロ白金、カールシュテット(Karstedt) 触媒、また、アシュビー(Ashby)の米国特許第3159601号及び3159662号明細書中に記載された白金-炭化水素複合体、ならびにラモロー(Lamoreaux)の米国特許第3220972号明細書中に記載された白金アルコラート触媒が挙げられる。更に、モディック(Modic)の米国特許第3516946号明細書中に記載された塩化白金-オレフィン複合体も本発明において有用である。

【0074】また、白金化合物以外の触媒の例としては、 $\text{RhCl}(\text{PPh}_3)_3$ 、 RhCl_3 、 RhAl_2O_3 、 RuCl_3 、 IrCl_3 、 FeCl_3 、 AlCl_3 、 $\text{PdCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 NiCl_2 、 TiCl_4 、等が挙げられる。

【0075】これらの中では、触媒活性の点から塩化白金酸、白金-オレフィン錯体、白金-ビニルシロキサン錯体等が好ましい。また、これらの触媒は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

【0076】触媒の添加量は特に限定されないが、十分な硬化性を有し、かつ硬化性組成物のコストを比較的低く抑えるため好ましい添加量の下限は、(β)成分のSiH基1モルに対して 10^{-8} モル、より好ましくは 10^{-6} モルであり、好ましい添加量の上限は(β)成分のSiH基1モルに対して 10^{-3} モル、より好ましくは 10^{-2} モルである。

【0077】また、上記触媒には助触媒を併用することが可能であり、例としてトリフェニルホスフィン等のリン系化合物、ジメチルマレエート等の1、2-ジエステル系化合物、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-ブテン等のアセチレンアルコール系化合物、単体の硫黄等の硫黄系化合物、トリエチルアミン等のアミン系化合物等が挙げられる。助触媒の添加量は特に限定されないが、ヒドロシリル化触媒1モルに対しての好ましい添加量の下限は、 10^{-3} モル、より好ましくは 10^{-1} モルであり、好ましい添加量の上限は 10^2 モル、より好ましくは 10^3 モルである。

【0078】反応させる場合のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物、(β)成分、触媒の混合の方法としては、各種方法をとることができるが、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2

個含有する有機化合物に触媒を混合したものを、(β)成分にを混合する方法が好ましい。SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物、(β)成分の混合物に触媒を混合する方法だと反応の制御が困難である。(β)成分と触媒を混合したものにSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物を混合する方法をとる場合は、触媒の存在下(β)成分が混入している水分と反応性を有するため、変質することがある。

【0079】反応温度としては種々設定できるが、この場合好ましい温度範囲の下限は 30°C 、より好ましくは 50°C であり、好ましい温度範囲の上限は 200°C 、より好ましくは 150°C である。反応温度が低いと十分に反応させるための反応時間が長くなり、反応温度が高いと実用的でない。反応は一定の温度で行ってもよいが、必要に応じて多段階あるいは連続的に温度を変化させてもよい。

【0080】反応時間、反応時の圧力も必要に応じ種々設定できる。

【0081】ヒドロシリル化反応の際に溶媒を使用してもよい。使用できる溶剤はヒドロシリル化反応を阻害しない限り特に限定されるものではなく、具体的に例示すれば、ベンゼン、トルエン、ヘキサン、ヘプタン等の炭化水素系溶媒、テトラヒドロフラン、1、4-ジオキサン、1、3-ジオキソラン、ジエチルエーテル等のエーテル系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶媒、クロロホルム、塩化メチレン、1、2-ジクロロエタン等のハロゲン系溶媒を好適に用いることができる。溶媒は2種類以上の混合溶媒として用いることもできる。溶媒としては、トルエン、テトラヒドロフラン、1、3-ジオキソラン、クロロホルムが好ましい。使用する溶媒量も適宜設定できる。

【0082】その他、反応性を制御する目的等のために種々の添加剤を用いてもよい。

【0083】SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分を反応させた後に、溶媒あるいは/および未反応のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物あるいは/および(β)成分を除去することでもできる。これらの揮発分を除去することにより、得られる(A)成分が揮発分を有さないため(B)成分との硬化の場合に揮発分の揮発によるボイド、クラックの問題が生じにくい。除去する方法としては例えば、減圧脱揮の他、活性炭、ケイ酸アルミニウム、シリカゲル等による処理等が挙げられる。減圧脱揮する場合には低温で処理することが好ましい。この場合の好ましい温度の上限は 100°C であり、より好ましくは 60°C である。高温で処理すると増粘等の変質を伴いやすい。

【0084】以上のような、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と(β)成分の反応物である(A)成分の例としては、ビスフェノールAジアリルエーテルと1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン(の反応物、ビニルシクロヘキセンと1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン(の反応物、ジビニルベンゼンと1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン(の反応物、ジシクロペンタジエンと1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン(の反応物、トリアリルイソシアヌレートと1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン(の反応物、ジアリルモノグリシジルイソシアヌレートと1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン(の反応物、等を挙げることができる。(B)成分)次に、(B)成分であるSiH基を有する化合物について説明する。

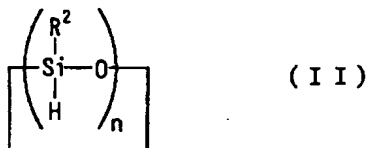
【0085】本発明の(B)成分は、1分子中に少なくとも2個のSiH基を含有する化合物である。

【0086】(B)成分については1分子中に少なくとも2個のSiH基を含有する化合物であれば特に制限がなく、例えば国際公開WO96/15194に記載される化合物で、1分子中に少なくとも2個のSiH基を有するもの等が使用できる。

【0087】これらのうち、入手性の面からは、1分子中に少なくとも2個のSiH基を有する鎖状及び/又は環状オルガノポリシロキサンが好ましく、(A)成分との相溶性が良いという観点からは、さらに、下記一般式(I I)

【0088】

【化24】



(式中、R²は炭素数1~6の有機基を表し、nは3~10の数を表す。)で表される、1分子中に少なくとも2個のSiH基を有する環状オルガノポリシロキサンが好ましい。

【0089】一般式(I I)で表される化合物中の置換基R²は、C、H、Oから構成されるものであることが好ましく、炭化水素基であることがより好ましく、メチル基であることがさらに好ましい。

【0090】一般式(I I)で表される化合物としては、入手容易性の観点からは、1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサンであることが好ましい。

【0091】(B)成分の分子量は特に制約はなく任意のものが好適に使用できるが、より流動性を発現しやすいという観点からは低分子量のものが好ましく用いられ

る。具体的には、分子量が50~100,000のものが好ましく、50~1,000のものがより好ましく、50~700のものがさらに好ましい。

【0092】(B)成分は単独もしくは2種以上のものを混合して用いることが可能である。

【0093】(A)成分と良好な相溶性を有するという観点、および(B)成分の揮発性が低くなり得られる封止剤からのアウトガスの問題が生じ難いという観点からは、(B)成分は、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に1個以上含有する有機化合物(α)と、1分子中に少なくとも2個のSiH基を有する鎖状及び/又は環状のポリオルガノシロキサン(β)を、ヒドロシリル化反応して得ることができる化合物であることが好ましい。

((α)成分)ここで(α)成分は上記した(A)成分である、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する有機化合物と同じもの(α1)も用いることができる。(α1)成分を用いると得られる硬化物の架橋密度が高くなり力学強度が高く信頼性の高い封止剤となりやすい。

【0094】その他、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に1個含有する有機化合物(α2)も用いることができる。(α2)成分を用いると得られる硬化物が低弾性となりやすく、低応力により信頼性の高い封止剤となりやすい。

((α2)成分)(α2)成分としては、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に1個含有する有機化合物であれば特に限定されないが、(B)成分が(A)成分と相溶性がよくなるという点において

30 は、化合物としてはポリシロキサン-有機ブロックコポリマーやポリシロキサン-有機グラフトコポリマーのようなシロキサン単位(Si-O-Si)を含むものではなく、構成元素としてC、H、N、O、S、およびハロゲンのみを含むものであることが好ましい。

【0095】(α2)成分のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合の結合位置は特に限定されず、分子内のどこに存在してもよい。

【0096】(α2)成分の化合物は、重合体系の化合物と単量体系化合物に分類できる。

40 【0097】重合体系化合物としては例えば、ポリシロキサン系、ポリエーテル系、ポリエステル系、ポリアリレート系、ポリカーボネート系、飽和炭化水素系、不飽和炭化水素系、ポリアクリル酸エステル系、ポリアミド系、フェノール-ホルムアルデヒド系(フェノール樹脂系)、ポリイミド系の化合物を用いることができる。

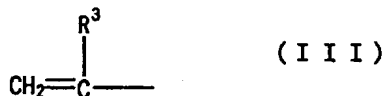
【0098】また単量体系化合物としては例えば、フェノール系、ビスフェノール系、ベンゼン、ナフタレン等の芳香族炭化水素系：直鎖系、脂環系等の脂肪族炭化水素系：複素環系の化合物、シリコン系の化合物およびこれらの混合物等が挙げられる。

31

【0099】(α2)成分のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合としては特に限定されないが、下記一般式(III)

【0100】

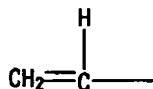
【化25】



(式中R³は水素原子あるいはメチル基を表す。)で示される基が反応性の点から好適である。また、原料の入手の容易さからは、

【0101】

【化26】



示される基が特に好ましい。

【0102】(α2)成分のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合としては、下記一般式(IV)

【0103】

【化27】

32



(式中R⁴は水素原子あるいはメチル基を表す。)で示される脂環式の基が、硬化物の耐熱性が高いという点から好適である。また、原料の入手の容易さからは、

【0104】

【化28】



示される脂環式の基が特に好ましい。

【0105】SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合は(α2)成分の骨格部分に直接結合していてもよく、2価以上の置換基を介して共有結合していても良い。2価以上の置換基としては炭素数0~10の置換基であれば特に限定されないが、(B)成分が(A)成分と相溶性がよくなりやすいという点においては、構成元素としてC、H、N、O、S、およびハロゲンのみを含むものが好ましい。これらの置換基の例としては、

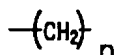
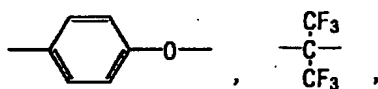
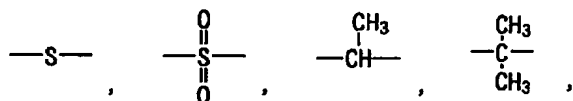
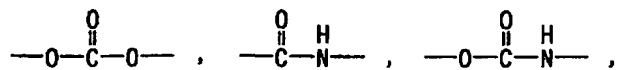
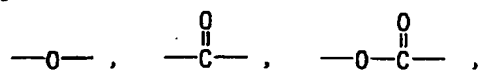
【0106】

【化29】

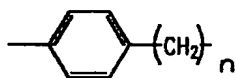
20

33

34



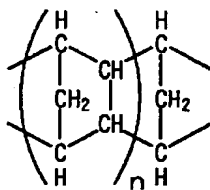
(nは1～10の数を表す。),



(nは0～4の数を表す。),

【0107】

【化30】



(nは0～4の数を表す。)

が挙げられる。また、これらの2価以上の置換基の2つ以上が共有結合によりつながって1つの2価以上の置換基を構成していてもよい。

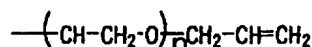
40

【0108】以上のような骨格部分に共有結合する基の例としては、ビニル基、アリル基、メタリル基、アクリル基、メタクリル基、2-ヒドロキシ-3-(アリルオキシ)プロピル基、2-アリルフェニル基、3-アリルフェニル基、4-アリルフェニル基、2-(アリルオキシ)フェニル基、3-(アリルオキシ)フェニル基、4-(アリルオキシ)フェニル基、2-(アリルオキシ)エチル基、2,2-ビス(アリルオキシメチル)プロピル基、3-アリルオキシ-2,2-ビス(アリルオキシメチル)プロピル基、

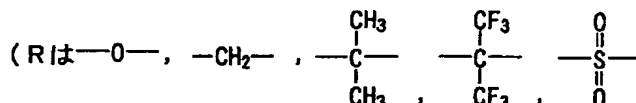
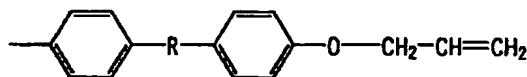
【0109】

【化31】

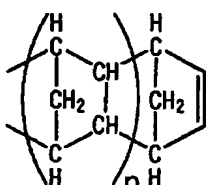
35



(n は $5 \geq n \geq 2$ を満足する数を表す。),



から選ばれる2価の基を表す。),



(n は0~4の数を表す。)

が挙げられる。

【0110】(α2)成分の具体的な例としては、プロペン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ドデセン、1-ウンデセン、出光石油化学社製リニアレン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、2,3,3-トリメチル-1-ブテン、2,4,4-トリメチル-1-ペンテン等のような鎖状脂肪族炭化水素系化合物類、シクロヘキセン、メチルシクロヘキセン、メチレンシクロヘキサン、ノルボルニレン、エチリデンシクロヘキサン、ビニルシクロヘキサン、カンフェン、カレン、αピネン、βピネン等のような環状脂肪族炭化水素系化合物類、スチレン、αメチルスチレン、インデン、フェニルアセチレン、4-エチニルトルエン、アリルベンゼン、4-フェニル-1-ブテン等のような芳香族炭化水素系化合物、アルキルアリルエーテル、アリルフェニルエーテル等のアリルエーテル類、グリセリンモノアリルエーテル、エチレングリコールモノアリルエーテル、4-ビニル-1,3-ジオキソラン-2-オン等の脂肪族系化合物類、1,2-ジメトキシ-4-アリルベンゼン、*o*-アリルフェノール等の芳香族系化合物類、モノアリルジベンジルイソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌレート等の置換イソシアヌレート類、ビニルトリメチルシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリフェニルシラン等のシリコン化合物等が挙げられる。さらに、片末端アリル化ポリエチレンオキサイド、片末端アリル化ポリプロピレンオキサイド等のポリエーテル系樹脂、片末端アリル化ポリイソブチレン等の炭化水素系樹脂、片末端アリル

化ポリブチルアクリレート、片末端アリル化ポリメチルメタクリレート等のアクリル系樹脂、等の片末端にビニル基を有するポリマーあるいはオリゴマー類等も挙げることができる。

【0111】構造は線状でも枝分かれ状でもよく、分子量は特に制約はなく種々のものを用いることができる。分子量分布も特に制限ないが、混合物の粘度が低くなり成形性が良好となりやすいという点においては、分子量分布が3以下であることが好ましく、2以下であることがより好ましく、1.5以下であることがさらに好ましい。

【0112】(α2)成分のガラス転位温度が存在する場合はこれについても特に限定はなく種々のものが用いられるが、得られる硬化物が強靱となりやすいという点においては、ガラス点移転温度は100℃以下であることが好ましく、50℃以下であることがより好ましく、0℃以下であることがさらに好ましい。好ましい樹脂の例としてはポリブチルアクリレート樹脂等が挙げられる。逆に得られる硬化物の耐熱性が高くなるという点においては、ガラス転位温度は100℃以上であることが好ましく、120℃以上であることがより好ましく、150℃以上であることがさらに好ましく、170℃以上であることが最も好ましい。ガラス転位温度は動的粘弾性測定においてtanδが極大を示す温度として求めることができる。

【0113】(α2)成分としては、得られる硬化物の耐熱性が高くなるという点においては、炭化水素化合物であることが好ましい。この場合好ましい炭素数の下限は7であり、好ましい炭素数の上限は10である。

【0114】(α2)成分としてはその他の反応性基を有していてもよい。この場合の反応性基としては、エポキシ基、アミノ基、ラジカル重合性不飽和基、カルボキシ基、イソシアネート基、ヒドロキシ基、アルコキシシリル基等が挙げられる。これらの官能基を有している場合には得られる硬化性組成物の接着性が高くなりやすく、得られる硬化物の強度が高くなりやすい。接着性がより高くなりうるという点からは、これらの官能基のうちエポキシ基が好ましい。また、得られる硬化物の耐熱性が高くなりやすいという点においては、反応性基を平均して1分子中に1個以上有していることが好ましい。具体的にはモノアリルジグリシジルイソシアヌレート*

*ト、アリルグリシジルエーテル、アリロキシエチルメタクリレート、アリロキシエチルアクリレート、ビニルトリメトキシシラン等が挙げられる。

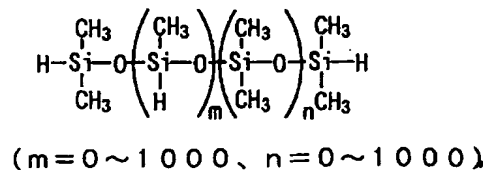
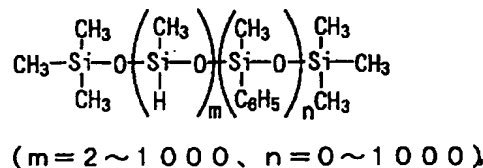
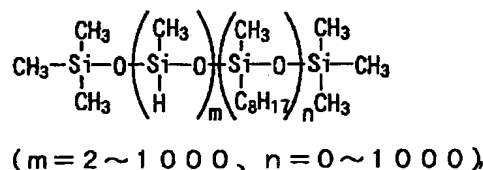
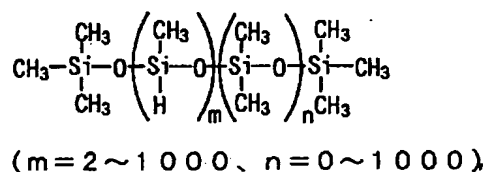
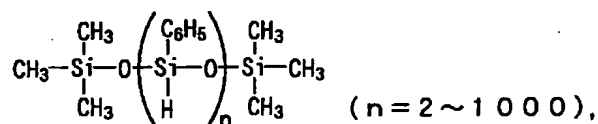
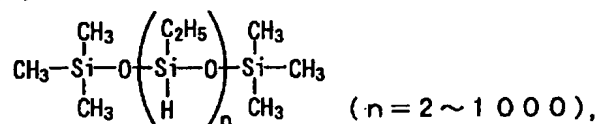
【0115】上記のような(α2)成分としては単一のものを用いてもよいし、複数のものを組み合わせて用いてもよい。

(β成分) (β)成分は、1分子中に少なくとも2個のSiH基を有する鎖状及び／又は環状のポリオルガノシロキサンである。

【0116】具体的には、例えば

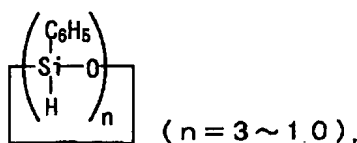
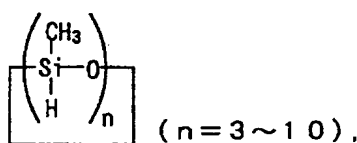
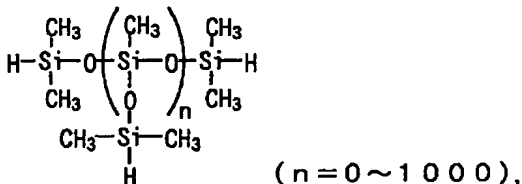
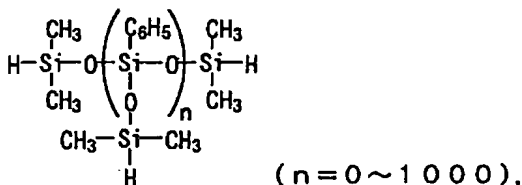
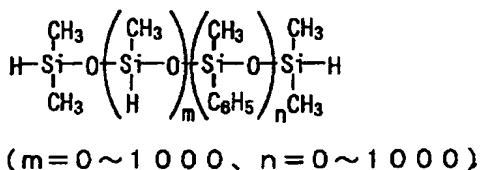
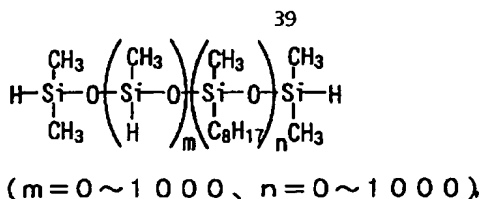
【0117】

【化32】



【0118】

【化33】

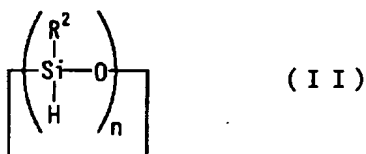


が挙げられる。

【0119】ここで、(α)成分との相溶性が良くなりやすいという観点から、下記一般式(II)

【0120】

【化34】



(式中、R²は炭素数1～6の有機基を表し、nは3～10の数を表す。)で表される、1分子中に少なくとも3個のSiH基を有する環状ポリオルガノシロキサンが好ましい。

【0121】一般式(II)で表される化合物中の置換

40

基R²は、C、H、Oから構成されるものであることが好ましく、炭化水素基であることがより好ましく、メチル基であることがさらに好ましい。

【0122】入手容易性等から、1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサンであることが好ましい。

【0123】上記したような各種(β)成分は単独もしくは2種以上のものを混合して用いることが可能である。

- 10 (α)成分と(β)成分の反応)次に、本発明の(B)成分として、(α)成分と(β)成分をヒドロシリル化反応して得ることができる化合物を用いる場合の、(α)成分と(β)成分とのヒドロシリル化反応に関して説明する。

【0124】尚、(α)成分と(β)成分をヒドロシリル化反応すると、本発明の(B)成分を含む複数の化合物の混合物が得られることがあるが、そこから(B)成分を分離することなく混合物のままで用いて本発明の硬化性組成物を作成することもできる。

- 20 【0125】(α)成分と(β)成分をヒドロシリル化反応させる場合の(α)成分と(β)成分の混合比率は、特に限定されないが、得られる(B)成分と(A)成分とのヒドロシリル化による硬化物の強度を考えた場合、(B)成分のSiH基が多い方が好ましいため、一般に混合する(α)成分中のSiH基との反応性を有する炭素-炭素二重結合の総数(X)と、混合する(β)成分中のSiH基の総数(Y)との比が、 $Y/X \geq 2$ であることが好ましく、 $Y/X \geq 3$ であることがより好ましい。また(B)成分の(A)成分との相溶性がよくなりやすいという点からは、 $10 \geq Y/X$ であることが好ましく、 $5 \geq Y/X$ であることがより好ましい。

- 30 【0126】(α)成分と(β)成分をヒドロシリル化反応させる場合には適当な触媒を用いてもよい。触媒としては、例えば次のようなものを用いることができる。白金の単体、アルミナ、シリカ、カーボンブラック等の担体に固体白金を担持させたもの、塩化白金酸、塩化白金酸とアルコール、アルデヒド、ケトン等との錯体、白金-オレフィン錯体(例えば、 $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}_2)_2$ 、 $(\text{PPh}_3)_2$ 、 $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}_2)_2\text{Cl}_2$)、白金-ビニルシロキサン錯体(例えば、 $\text{Pt}(\text{ViMe}_2\text{SiOSiMe}_2\text{Vi})_2$ 、 $\text{Pt}[(\text{MeViSiO})_2]_2$)、白金-ホスフィン錯体(例えば、 $\text{Pt}(\text{PPh}_3)_2$ 、 $\text{Pt}(\text{PBu}_3)_2$)、白金-ホスファイト錯体(例えば、 $\text{Pt}[\text{P}(\text{OPh})_2]_2$ 、 $\text{Pt}[\text{P}(\text{OBu})_2]_2$) (式中、Meはメチル基、Buはブチル基、Viはビニル基、Phはフェニル基を表し、n、mは、整数を示す。)ジカルボニルジクロロ白金、カールシュエト(Karstedt)触媒、また、アシュビー(Ashby)の米国特許第3159601号及び3159662号明細書中に記載された白金-炭化水素複合

体、ならびにラモロー (Lamoreaux) の米国特許第 3220972 号明細書中に記載された白金アルコラート触媒が挙げられる。更に、モディック (Modic) の米国特許第 3516946 号明細書中に記載された塩化白金-オレフィン複合体も本発明において有用である。

【0127】また、白金化合物以外の触媒の例としては、 $\text{RhCl}(\text{PPh})_3$ 、 RhCl_3 、 RhAl_2O_3 、 RuCl_3 、 IrCl_3 、 FeCl_3 、 AlCl_3 、 $\text{PdCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 NiCl_2 、 TiCl_4 、等が挙げられ

る。

【0128】これらの中では、触媒活性の点から塩化白金酸、白金-オレフィン錯体、白金-ビニルシロキサン錯体等が好ましい。また、これらの触媒は単独で使用してもよく、2 種以上併用してもよい。

【0129】触媒の添加量は特に限定されないが、十分な硬化性を有し、かつ硬化性組成物のコストを比較的低く抑えるため好ましい添加量の下限は、(β) 成分の SiH 基 1 モルに対して 10^{-8} モル、より好ましくは 10^{-6} モルであり、好ましい添加量の上限は (β) 成分の SiH 基 1 モルに対して 10^{-1} モル、より好ましくは 10^{-2} モルである。ここからまた、上記触媒には助触媒を併用することが可能であり、例としてトリフェニルホスフィン等のリン系化合物、ジメチルマレエート等の 1、2-ジエステル系化合物、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-ブテン等のアセチレンアルコール系化合物、単体の硫黄等の硫黄系化合物、トリエチルアミン等のアミン系化合物等が挙げられる。助触媒の添加量は特に限定されないが、ヒドロシリル化触媒 1 モルに対しての好ましい添加量の下限は、 10^{-2} モル、より好ましくは 10^{-1} モルであり、好ましい添加量の上限は 10^2 モル、より好ましくは 10 モルである。

【0130】反応させる場合の (α) 成分、(β) 成分、触媒の混合の方法としては、各種方法をとることができるが、(α) 成分に触媒を混合したものを、(β) 成分に混合する方法が好ましい。(α) 成分、(β) 成分の混合物に触媒を混合する方法だと反応の制御が困難である。(β) 成分と触媒を混合したものに (α) 成分を混合する方法をとる場合は、触媒の存在下 (β) 成分が混入している水分と反応性を有するため、変質することがある。

【0131】反応温度としては種々設定できるが、この場合好ましい温度範囲の下限は 30°C 、より好ましくは 50°C であり、好ましい温度範囲の上限は 200°C 、より好ましくは 150°C である。反応温度が低いと十分に反応させるための反応時間が長くなり、反応温度が高いと実用的でない。反応は一定の温度で行ってもよいが、必要に応じて多段階あるいは連続的に温度を変化させてもよい。

【0132】反応時間、反応時の圧力も必要に応じ種々

設定できる。

【0133】ヒドロシリル化反応の際に溶媒を使用してもよい。使用できる溶剤はヒドロシリル化反応を阻害しない限り特に限定されるものではなく、具体的に例示すれば、ベンゼン、トルエン、ヘキサン、ヘプタン等の炭化水素系溶媒、テトラヒドロフラン、1, 4-ジオキサン、1, 3-ジオキソラン、ジエチルエーテル等のエーテル系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶媒、クロロホルム、塩化メチレン、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン系溶媒を好適に用いることができる。溶媒は 2 種類以上の混合溶媒として用いることもできる。溶媒としては、トルエン、テトラヒドロフラン、1, 3-ジオキソラン、クロロホルムが好ましい。使用する溶媒量も適宜設定できる。

【0134】その他、反応性を制御する目的等のために種々の添加剤を用いてもよい。

【0135】(α) 成分と (β) 成分を反応させた後に、溶媒あるいは／および未反応の (α) 成分あるいは／および (β) 成分を除去することもできる。これらの揮発分を除去することにより、得られる (B) 成分が揮発分を有さないため (A) 成分との硬化の場合に揮発分の揮発によるボイド、クラックの問題が生じにくい。除去する方法としては例えば、減圧脱揮の他、活性炭、ケイ酸アルミニウム、シリカゲル等による処理等が挙げられる。減圧脱揮する場合には低温で処理することが好ましい。この場合の好ましい温度の上限は 100°C であり、より好ましくは 60°C である。高温で処理すると増粘等の変質を伴いやすい。

【0136】以上のような、(α) 成分と (β) 成分の反応物である (B) 成分の例としては、ビスフェノール A ジアリルエーテルと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、ビニルシクロヘキセンと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、ジビニルベンゼンと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、ジシクロペンタジエンと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、トリアリルイソシアヌレートと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、ジアリルモノグリシジルイソシアヌレートと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、アリルグリシジルエーテルと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、α-メチルスチレンと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、モノアリルジグリシジルイソシアヌレートと 1, 3, 5, 7-тетрамethylシクロテトラシロキサンの反応物、等を挙げることができる。

((A) 成分と (B) 成分の混合) (A) 成分と (B) 成分の組合せについては (A) 成分の例として挙げたものおよびそれらの各種混合物／(B) 成分の例として挙げたものおよびそれらの各種混合物、の各種組み合わせ

を挙げることができる。

【0137】(A)成分と(B)成分の混合比率は、必要な強度を失わない限りは特に限定されないが、(B)成分中のSiH基の数(Y)の(A)成分中の炭素-炭素二重結合の数(X)に対する比において、好ましい範囲の下限は $Y/X \geq 0.3$ 、より好ましくは $Y/X \geq 0.5$ 、さらに好ましくは $Y/X \geq 0.7$ であり、好ましい範囲の上限は $3 \geq Y/X$ 、より好ましくは $2 \geq Y/X$ 、さらに好ましくは $1.5 \geq Y/X$ である。好ましい範囲からはずれた場合には十分な強度が得られなかったり、熱劣化しやすくなる場合がある。

((C)成分)次に(C)成分であるヒドロシリル化触媒について説明する。

【0138】ヒドロシリル化触媒としては、ヒドロシリル化反応の触媒活性があれば特に限定されないが、例えば、白金の単体、アルミナ、シリカ、カーボンブラック等の担体に固体白金を担持させたもの、塩化白金酸、塩化白金酸とアルコール、アルデヒド、ケトン等との錯体、白金-オレフィン錯体(例えば、 $Pt(CH_2=C(H)_2)_2(PPh_3)_2$ 、 $Pt(CH_2=CH_2)_2Cl_2$)、白金-ビニルシロキサン錯体(例えば、 $Pt(ViMe_2SiOSiMe_2Vi)_n$ 、 $Pt[(MeViSiO)_m]$)、白金-ホスフィン錯体(例えば、 $Pt(PPh_3)_4$ 、 $Pt(PBu_3)_4$)、白金-ホスファイト錯体(例えば、 $Pt[P(OPh)_3]_4$ 、 $Pt[P(OBu)_3]_4$) (式中、Meはメチル基、Buはブチル基、Viはビニル基、Phはフェニル基を表し、n、mは、整数を示す。) 、ジカルボニルジクロロ白金、カールシュテット(Karstedt)触媒、また、アシュビー(Ashby)の米国特許第3159601号および3159662号明細書中に記載された白金-炭化水素複合体、ならびにラモロー(Lamoreaux)の米国特許第3220972号明細書中に記載された白金アルコラート触媒が挙げられる。さらに、モディック(Modic)の米国特許第3516946号明細書中に記載された塩化白金-オレフィン複合体も本発明において有用である。

【0139】また、白金化合物以外の触媒の例としては、 $RhCl(PPh)_3$ 、 $RhCl_3$ 、 $RhAl_2O_3$ 、 $RuCl_3$ 、 $IrCl_3$ 、 $FeCl_3$ 、 $AlCl_3$ 、 $PdCl_2 \cdot 2H_2O$ 、 $NiCl_2$ 、 $TiCl_4$ 、等が挙げられる。

【0140】これらの中では、触媒活性の点から塩化白金酸、白金-オレフィン錯体、白金-ビニルシロキサン錯体等が好ましい。また、これらの触媒は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

【0141】触媒の添加量は特に限定されないが、十分な硬化性を有し、かつ硬化性組成物のコストを比較的強く抑えるため好ましい添加量の下限は、(B)成分のSiH基1モルに対して 10^{-6} モル、より好ましくは 10

$^{-6}$ モルであり、好ましい添加量の上限は(B)成分のSiH基1モルに対して 10^{-1} モル、より好ましくは 10^{-2} モルである。

【0142】また、上記触媒には助触媒を併用することが可能であり、例としてトリフェニルホスフィン等のリン系化合物、ジメチルマレエート等の1、2-ジエステル系化合物、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-ブチン等のアセチレンアルコール系化合物、単体の硫黄等の硫黄系化合物、トリエチルアミン等のアミン系化合物等が挙げられる。助触媒の添加量は特に限定されないが、ヒドロシリル化触媒1モルに対しての好ましい添加量の下限は、 10^{-2} モル、より好ましくは 10^{-1} モルであり、好ましい添加量の上限は 10^2 モル、より好ましくは 10 モルである。

((D)成分)次に、本発明の(D)成分である接着付与剤について説明する。

【0143】接着付与剤としては一般に用いられている接着剤の他、例えば種々のカップリング剤、エポキシ化合物、フェノール樹脂、クマロン-インデン樹脂、ロジエンエステル樹脂、テルペン-フェノール樹脂、 α -メチルスチレン-ビニルトルエン共重合体、ポリエチルメチルスチレン、芳香族ポリイソシアネート等を挙げることができる。

【0144】カップリング剤としては例えばシランカップリング剤が挙げられる。シランカップリング剤としては、分子中に有機基と反応性のある官能基と加水分解性のケイ素基を各々少なくとも1個有する化合物であれば特に限定されない。有機基と反応性のある基としては、取扱い性の点からエポキシ基、メタクリル基、アクリル基、イソシアネート基、イソシアヌレート基、ビニル基、カルバメート基から選ばれる少なくとも1個の官能基が好ましく、硬化性及び接着性の点から、エポキシ基、メタクリル基、アクリル基が特に好ましい。加水分解性のケイ素基としては取扱い性の点からアルコキシシリル基が好ましく、反応性の点からメトキシシリル基、エトキシシリル基が特に好ましい。

【0145】好ましいシランカップリング剤としては、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン等のエポキシ官能基を有するアルコキシシラン類：3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メタクリロキシメチルトリメトキシシラン、メタクリロキシメチルトリエトキシシラン、アクリロキシメチルトリエトキシシラン等のメタクリル基あるいはアクリル基を有するアルコキシシ

ラン類が例示できる。

【0146】シランカップリング剤の添加量としては種々設定できるが、[(A)成分+(B)成分]100重量部に対しての好ましい添加量の下限は0.1重量部、より好ましくは0.5重量部であり、好ましい添加量の上限は50重量部、より好ましくは25重量部である。添加量が少ないと接着性改良効果が表れず、添加量が多いと硬化物物性に悪影響を及ぼす場合がある。

【0147】エポキシ化合物としては、例えば、ノボラックフェノール型エポキシ樹脂、ビスフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビスフェノールAジグリシジルエーテル、2,2'-ビス(4-グリシジルオキシシクロヘキシル)プロパン、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキサンカーボキシレート、ビニルシクロヘキセンジオキサイド、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)-5,5-スビロ-(3,4-エポキシシクロヘキサン)-1,3-ジオキサン、ビス(3,4-エポキシシクロヘキシル)アジベート、1,2-シクロプロパンジカルボン酸ビスグリシジルエステル、トリグリシジルイソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌレート、ジアリルモノグリシジルイソシアヌレート等を挙げることができる。

【0148】エポキシ化合物の添加量としては種々設定できるが、[(A)成分+(B)成分]100重量部に対しての好ましい添加量の下限は1重量部、より好ましくは3重量部であり、好ましい添加量の上限は50重量部、より好ましくは25重量部である。添加量が少ないと接着性改良効果が表れず、添加量が多いと硬化物物性に悪影響を及ぼす場合がある。

【0149】また、これらのカップリング剤、シランカップリング剤、エポキシ化合物等は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

【0150】これらの接着付与剤の内、接着性付与効果が高いという点においては分子内にエポキシ基を含有する化合物が好ましい。エポキシ基を含有する化合物の例としては、上記した、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン等のエポキシ官能基を有するアルコキシシラン類や、ノボラックフェノール型エポキシ樹脂、ビスフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビスフェノールAジグリシジルエーテル、2,2'-ビス(4-グリシジルオキシシクロヘキシル)プロパン、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキサンカーボキシレート、ビニルシクロヘキセンジオキサイド、2-(3,4-

-エポキシシクロヘキシル)-5,5-スビロ-(3,4-エポキシシクロヘキサン)-1,3-ジオキサン、ビス(3,4-エポキシシクロヘキシル)アジベート、1,2-シクロプロパンジカルボン酸ビスグリシジルエステル、トリグリシジルイソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌレート、ジアリルモノグリシジルイソシアヌレート等のようなエポキシ化合物等が挙げられる。

(E)成分)次に(E)成分であるシラノール縮合触媒について説明する。

【0151】本発明においてはカップリング剤やエポキシ化合物の効果を高めるために、さらにシラノール縮合触媒を用いることができ、接着性の向上および/あるいは安定化が可能である。このようなシラノール縮合触媒としては特に限定されないが、ボロン系化合物あるいは/およびアルミニウム系化合物あるいは/およびチタン系化合物が好ましい。シラノール縮合触媒となるボロン系化合物としては、トリメトキシボラン、トリエトキシボラン、トリイソプロポキシボラン、トリブトキシボラン、トリフェノキシボラン等のボロンアルコキシド類が例示できる。シラノール縮合触媒となるアルミニウム系化合物としては、アルミニウムトリイソプロポキシド、sec-ブトキシアルミニウムジイソプロポキシド、アルミニウムトリsec-ブトキシド等のアルミニウムアルコキシド類：、エチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロポキシド、アルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)、アルミキレートM(川研ファインケミカル製、アルキルアセトアセテートアルミニウムジイソプロポキシド)、アルミニウムトリス(アセチルアセトネート)、アルミニウムモノアセチルアセトネートビス(エチルアセトアセテート)等のアルミニウムキレート類等が例示でき、取扱い性の点からアルミニウムキレート類がより好ましい。シラノール縮合触媒となるチタン系化合物としては、テトライソプロポキシチタン、テトラブトキシチタン等のテトラアルコキシチタン類：チタンテトラアセチルアセトネート等のチタンキレート類：オキシ酢酸やエチレングリコール等の残基を有する一般的なチタネートカップリング剤が例示できる。

【0152】シラノール縮合触媒を用いる場合の使用量は種々設定できるが、カップリング剤あるいは/およびエポキシ化合物エポキシ化合物100重量部に対しての好ましい添加量の下限は0.1重量部、より好ましくは1重量部であり、好ましい添加量の上限は50重量部、より好ましくは30重量部である。添加量が少ないと接着性改良効果が表れず、添加量が多いと硬化物物性に悪影響を及ぼす場合がある。

【0153】また、これらのシラノール縮合触媒は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

(F)成分)次に(F)成分であるカルボン酸類あるいは/および酸無水物類について説明する。

10

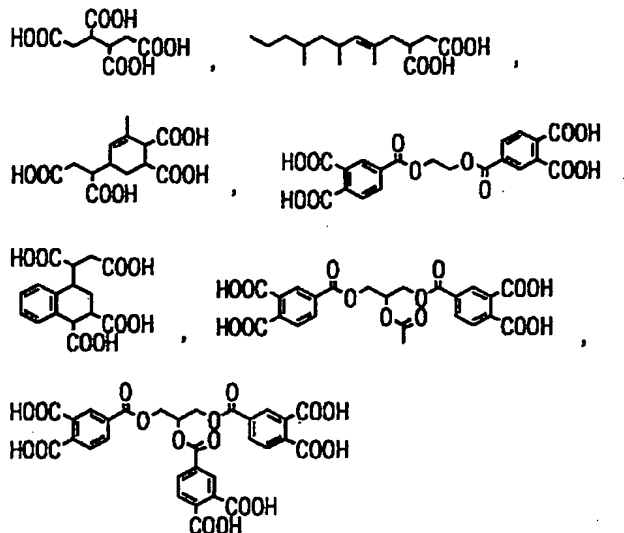
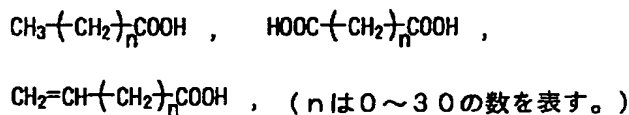
20

30

40

50

【0154】本発明においてはエポキシ基を含有する化合物の効果を高めるために、カルボン酸類あるいは／および酸無水物類を用いることができ、接着性の向上および／あるいは安定化が可能である。このようなカルボン*



2-エチルヘキサン酸、シクロヘキサンカルボン酸、シクロヘキサジカルボン酸、メチルシクロヘキサジカルボン酸、テトラヒドロフタル酸、メチルテトラヒドロフタル酸、メチルハイミック酸、ノルボルネンジカルボン酸、水素化メチルナジック酸、マレイン酸、アセチレNJカルボン酸、乳酸、リンゴ酸、クエン酸、酒石酸、安息香酸、ヒドロキシ安息香酸、桂皮酸、フタル酸、トリメリット酸、ピロメリット酸、ナフタレンカルボン酸、ナフタレンジカルボン酸、およびそれらの単独あるいは複合酸無水物が挙げられる。

※



テトラヒドロフタル酸、メチルテトラヒドロフタル酸およびそれらの単独あるいは複合酸無水物等が挙げられる。

【0158】カルボン酸類あるいは／および酸無水物類を用いる場合の使用量は種々設定できるが、カップリング剤あるいは／およびエポキシ化合物エポキシ化合物100重量部に対しての好ましい添加量の下限は0.1重量部、より好ましくは1重量部であり、好ましい添加量の上限は50重量部、より好ましくは10重量部である。添加量が少なくと接着性改良効果が表れず、添加量が多いと硬化物性に悪影響を及ぼす場合がある。

【0159】また、これらのカルボン酸類あるいは／お

* 酸類、酸無水物類としては特に限定されないが、

【0155】

【化35】

※【0156】これらのカルボン酸類あるいは／および酸無水物類のうち、ヒドロシリル化反応性を有し硬化物からの染み出しの可能性が少なく得られる硬化物の物性を損ない難いという点においては、SiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を含有するものが好ましい。好ましいカルボン酸類あるいは／および酸無水物類としては、例えば、

【0157】

【化36】

よび酸無水物類は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

(混合) (A)成分、(B)成分、(C)成分、(D)成分の混合の方法としては、各種方法をとることができるが、封止材の中間原料の貯蔵安定性が良好になりやすいという点においては、(A)成分に(C)成分および(D)成分を混合したものと、(B)成分を混合する方法が好ましい。(B)成分に(C)成分あるいは／および(D)成分を混合したものに(A)成分を混合する方法をとる場合は、(C)成分存在下あるいは／および存在下において(B)成分が環境中の水分あるいは／および(D)成分の反応性を有するため、貯蔵中等に変

質することもある。

（添加剤）

（硬化遅延剤）本発明の封止剤にはの保存安定性を改良する目的、あるいは製造過程でのヒドロシリル化反応の反応性を調整する目的で、硬化遅延剤を使用することができる。硬化遅延剤としては、脂肪族不飽和結合を含有する化合物、有機リン化合物、有機イオウ化合物、窒素含有化合物、スズ系化合物、有機過酸化物等が挙げられ、これらを併用してもかまわない。脂肪族不飽和結合を含有する化合物として、プロパギルアルコール類、エン-イン化合物類、マレイン酸エステル類等が例示される。有機リン化合物としては、トリオルガノフォスフィン類、ジオルガノフォスフィン類、オルガノフォスフィン類、トリオルガノフォスファイト類等が例示される。有機イオウ化合物としては、オルガノメルカプタン類、ジオルガノスルフィド類、硫化水素、ベンゾチアゾール、ベンゾチアゾールジサルファイド等が例示される。窒素含有化合物としては、アンモニア、1～3級アルキルアミン類、アリールアミン類、尿素、ヒドラジン等が例示される。スズ系化合物としては、ハロゲン化第一スズ2水和物、カルボン酸第一スズ等が例示される。有機過酸化物としては、ジ-*t*-ブチルペルオキシド、ジクミルペルオキシド、ベンゾイルペルオキシド、過安息香酸-*t*-ブチル等が例示される。

【0160】これらの硬化遅延剤のうち、遅延活性が良好で原料入手性がよいという観点からは、ベンゾチアゾール、チアゾール、ジメチルマレート、3-ヒドロキシ-3-メチル-1-ブチンが好ましい。

【0161】硬化遅延剤の添加量は種々設定できるが、使用するヒドロシリル化触媒1molに対する好ましい添加量の下限は 10^{-3} モル、より好ましくは1モルであり、好ましい添加量の上限は 10^3 モル、より好ましくは50モルである。

【0162】また、これらの硬化遅延剤は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

（接着性改良剤）また、本発明においては接着性付与効果をさらに高めるために、さらにシラノール源化合物を用いることができ、接着性の向上および／あるいは安定化が可能である。このようなシラノール源としては、例えばトリフェニルシラノール、ジフェニルジヒドロキシシラン等のシラノール化合物、ジフェニルジメトキシシラン、テトラメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン等のアルコキシシラン類等を挙げることができる。

【0163】シラノール源化合物を用いる場合の使用量は種々設定できるが、カップリング剤あるいは／およびエポキシ化合物エポキシ化合物100重量部に対しての好ましい添加量の下限は0.1重量部、より好ましくは1重量部であり、好ましい添加量の上限は50重量部、より好ましくは30重量部である。添加量が少ないと接着性改良効果が表れず、添加量が多いと硬化物物性に悪

影響を及ぼす場合がある。

【0164】また、これらのシラノール源化合物は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

（熱硬化性樹脂）本発明の封止剤には特性を改質する等の目的で、種々の熱硬化性樹脂を添加することも可能である。熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、シアネートエステル樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、ウレタン樹脂、ビスマレイミド樹脂等が例示されるがこれに限定されるものではない。これらのうち、接着性等の実用特性に優れるという観点から、エポキシ樹脂が好ましい。

【0165】エポキシ樹脂としては、例えば、ノボラックフェノール型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビスフェノールAジグリシジルエーテル、2, 2'-ビス(4-グリシジルオキシシクロヘキシル)プロパン、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサノール、ビニルシクロヘキサジエンジオキサライド、2-(3, 4-エポキシシクロヘキシル)-5, 5-スビロ-(3, 4-エポキシシクロヘキサン)-1, 3-ジオキサン、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシル)アジペート、1, 2-シクロプロパンジカルボン酸ビスグリシジルエステル、トリグリシジルイソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌレート、ジアリルモノグリシジルイソシアヌレート等のエポキシ樹脂を、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、トリアルキルテトラヒドロ無水フタル酸、水素化メチルナジック酸無水物等の脂肪族酸無水物で硬化させるものが挙げられる。これらのエポキシ樹脂あるいは硬化剤はそれぞれ単独で用いても、複数のものを組み合わせてもよい。

【0166】熱硬化性樹脂の添加量としては特に限定はないが、好ましい使用量の下限は硬化性組成物全体の5重量%、より好ましくは10重量%であり、好ましい使用量の上限は硬化性組成物中の50重量%、より好ましくは30重量%である。添加量が少ないと、接着性等目的とする効果が得られにくいし、添加量が多いと脆くなりやすい。

【0167】これらの熱硬化性樹脂は単独で用いても、複数のものを組み合わせてもよい。

【0168】熱硬化樹脂は樹脂原料あるいは／および硬化させたものを、(A)成分あるいは／および(B)成分に溶かして均一な状態として混合してもよいし、粉碎して粒子状態で混合してもよいし、溶媒に溶かして混合する等して分散状態としてもよい。得られる硬化物がより透明になりやすいという点においては、(A)成分あるいは／および(B)成分に溶かして均一な状態として混合することが好ましい。この場合も、熱硬化性樹脂を

(A)成分あるいは／および(B)成分に直接溶解させ

てもよいし、溶媒等を用いて均一に混合してもよいし、その後溶媒を除いて均一な分散状態あるいは／および混合状態としてもよい。

【0169】熱硬化性樹脂を分散させて用いる場合は、平均粒子径は種々設定できるが、好ましい平均粒子径の下限は10nmであり、好ましい平均粒子径の上限は10μmである。粒子系の分布はあってもよく、単一分散であっても複数のピーク粒径を持っていたりもよいが、硬化性組成物の粘度が低く成形性が良好となりやすいという観点からは粒子径の変動係数が10%以下であることが好ましい。

（熱可塑性樹脂）本発明の封止剤には特性を改質する等の目的で、種々の熱可塑性樹脂を添加することも可能である。熱可塑性樹脂としては種々のものを用いることができるが、例えば、メチルメタクリレート単独重合体あるいはメチルメタクリレートと他モノマーとのランダム、ブロック、あるいはグラフト重合体等のポリメチルメタクリレート系樹脂（例えば日立化成社製オプトレット等）、ブチルアクリレート単独重合体あるいはブチルアクリレートと他モノマーとのランダム、ブロック、あるいはグラフト重合体等のポリブチルアクリレート系樹脂等に代表されるアクリル系樹脂、ビスフェノールA、3,3,5-トリメチルシクロヘキシリデンビスフェノール等をモノマー構造として含有するポリカーボネート樹脂等のポリカーボネート系樹脂（例えば帝人社製APEC等）、ノルボルネン誘導体、ビニルモノマー等を単独あるいは共重合した樹脂、ノルボルネン誘導体を開環メタセシス重合させた樹脂、あるいはその水素添加物等のシクロオレフィン系樹脂（例えば、三井化学社製APEL、日本ゼオン社製ZEONOR、ZEONE X、JSR社製ARTON等）、エチレンとマレイミドの共重合体等のオレフィン-マレイミド系樹脂（例えば東ソー社製TIPAS等）、ビスフェノールA、ビス（4-（2-ヒドロキシエトキシ）フェニル）フルオレン等のビスフェノール類やジエチレングリコール等のジオール類とテレフタル酸、イソフタル酸、等のフタル酸類や脂肪族ジカルボン酸類を重縮合させたポリエステル等のポリエステル系樹脂（例えば鐘紡社製O-PET等）、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリアミド樹脂、シリコン樹脂、フッ素樹脂等の他、天然ゴム、EPDMといったゴム状樹脂が例示されるがこれに限定されるものではない。

【0170】熱可塑性樹脂としては、分子中にSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合あるいは／およびSiH基を有していてもよい。得られる硬化物がより強靱となりやすいという点においては、分子中にSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合あるいは／およびSiH基を平均して1分子中に1個以上有していること

が好ましい。

【0171】熱可塑性樹脂としてはその他の架橋性基を有していてもよい。この場合の架橋性基としては、エポキシ基、アミノ基、ラジカル重合性不飽和基、カルボキシ基、イソシアネート基、ヒドロキシ基、アルコキシシリル基等が挙げられる。得られる硬化物の耐熱性が高くなりやすいという点においては、架橋性基を平均して1分子中に1個以上有していることが好ましい。

【0172】熱可塑性樹脂の分子量としては、特に限定はないが、（A）成分や（B）成分との相溶性が良好となりやすいという点においては、数平均分子量が10000以下であることが好ましく、5000以下であることがより好ましい。逆に、得られる硬化物が強靱となりやすいという点においては、数平均分子量が10000以上であることが好ましく、100000以上であることがより好ましい。分子量分布についても特に限定はないが、混合物の粘度が低くなり成形性が良好となりやすいという点においては、分子量分布が3以下であることが好ましく、2以下であることがより好ましく、1.5以下であることがさらに好ましい。

【0173】熱可塑性樹脂の配合量としては特に限定はないが、好ましい使用量の下限は硬化性組成物全体の5重量%、より好ましくは10重量%であり、好ましい使用量の上限は硬化性組成物中の50重量%、より好ましくは30重量%である。添加量が少ないと得られる硬化物が脆くなりやすいし、多いと耐熱性（高温での弾性率）が低くなりやすい。

【0174】熱可塑性樹脂としては単一のものを用いてもよいし、複数のものを組み合わせて用いてもよい。

【0175】熱可塑性樹脂は（A）成分あるいは／および（B）成分に溶かして均一な状態として混合してもよいし、粉碎して粒子状態で混合してもよいし、溶媒に溶かして混合する等して分散状態としてもよい。得られる硬化物がより透明になりやすいという点においては、

（A）成分あるいは／および（B）成分に溶かして均一な状態として混合することが好ましい。この場合も、熱可塑性樹脂を（A）成分あるいは／および（B）成分に直接溶解させてもよいし、溶媒等を用いて均一に混合してもよいし、その後溶媒を除いて均一な分散状態あるいは／および混合状態としてもよい。

【0176】熱可塑性樹脂を分散させて用いる場合は、平均粒子径は種々設定できるが、好ましい平均粒子径の下限は10nmであり、好ましい平均粒子径の上限は10μmである。粒子系の分布はあってもよく、単一分散であっても複数のピーク粒径を持っていたりもよいが、硬化性組成物の粘度が低く成形性が良好となりやすいという観点からは粒子径の変動係数が10%以下であることが好ましい。

（充填剤）本発明の封止剤には充填剤を添加することもできる。

【0177】充填材としては各種のものが用いられるが、例えば、石英、ヒュームシリカ、沈降性シリカ、無水ケイ酸、熔融シリカ、結晶性シリカ、超微粉無定型シリカ等のシリカ系充填材、窒化ケイ素、銀粉、アルミナ、水酸化アルミニウム、酸化チタン、ガラス繊維、炭素繊維、マイカ、カーボンブラック、グラファイト、ゲイソウ土、白土、クレー、タルク、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、無機バルーン等の無機充填材をはじめとして、エポキシ系等の従来の封止材の充填材として一般に使用あるいは／および提案されている充填材等を挙げることができる。

【0178】充填材としては、封止する半導体や電子材料へダメージを与え難いという観点からは、低放射線性であることが好ましい。

【0179】充填材は適宜表面処理してもよい。表面処理としては、アルキル化処理、トリメチルシリル化処理、シリコーン処理、カップリング剤による処理等が挙げられる。

【0180】この場合のカップリング剤の例としては、シランカップリング剤が挙げられる。シランカップリング剤としては、分子中に有機基と反応性のある官能基と加水分解性のケイ素基を各々少なくとも1個有する化合物であれば特に限定されない。有機基と反応性のある基としては、取扱い性の点からエポキシ基、メタクリル基、アクリル基、イソシアネート基、イソシアヌレート基、ビニル基、カルバメート基から選ばれる少なくとも1個の官能基が好ましく、硬化性及び接着性の点から、エポキシ基、メタクリル基、アクリル基が特に好ましい。加水分解性のケイ素基としては取扱い性の点からアルコキシシリル基が好ましく、反応性の点からメトキシシリル基、エトキシシリル基が特に好ましい。

【0181】好ましいシランカップリング剤としては、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン等のエポキシ官能基を有するアルコキシシラン類：3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メタクリロキシメチルトリメトキシシラン、メタクリロキシメチルトリエトキシシラン、アクリロキシメチルトリメトキシシラン、アクリロキシメチルトリエトキシシラン等のメタクリル基あるいはアクリル基を有するアルコキシシラン類が例示できる。

【0182】その他にも充填材を添加する方法が挙げられる。例えばアルコキシシラン、アシロキシシラン、ハロゲン化シラン等の加水分解性シランモノマーあるいはオリゴマーや、チタン、アルミニウム等の金属のアルコ

キシド、アシロキシド、ハロゲン化物等を、本発明の組成物に添加して、組成物中あるいは組成物の部分反応物中で反応させ、組成物中で充填材を生成させる方法も挙げることができる。

【0183】以上のような充填材のうち硬化反応を阻害し難く、線膨張係数の低減化効果が大きいという観点からは、シリカ系充填材が好ましい。

【0184】充填材の平均粒径としては、封止材の狭い隙間への浸透性が良好となりやすいという点においては、10 μm 以下であることが好ましく、5 μm 以下であることがより好ましい。

【0185】充填材の粒径50 μm 以上の粒子の割合としては、封止材の狭い隙間への浸透性が良好となりやすいという点においては、1重量%以下であることが好ましく、0.1重量%以下であることがより好ましい。

【0186】充填材の粒径分布については、エポキシ系等の従来の封止材の充填材として使用あるいは／および提案されているものをはじめ、各種設定できる。例えば、24 μm 以上の粒子が15重量%以上かつ1 μm 以下の粒子が3重量%以上となるようにしてもよい。

【0187】充填材の平均粒子径、充填材の粒径50 μm 以上の粒子の割合はレーザー法マイクロトラック粒度分析計を用いて測定することができる。

【0188】充填材の比表面積についても、エポキシ系等の従来の封止材の充填材として使用あるいは／および提案されているものをはじめ、各種設定できる。例えば、4 m^2/g 以上、4 m^2/g 以下、10 m^2/g 以下等、任意に設定できる。

【0189】比表面積はBET法モノソープ比表面積測定装置によって測定できる。

【0190】充填材のガラス化率についても、エポキシ系等の従来の封止材の充填材として使用あるいは／および提案されているものをはじめ、各種設定できる。例えば、97%以上等、任意に設定できる。

【0191】充填材の形状としては、封止材の粘度が低くなりやすい観点からは、球状の充填材であることが好ましい。

【0192】充填材は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

【0193】充填材の添加量はとくに限定されないが、線膨張係数の低減化効果が高く、かつ封止剤の流動性が良好であるという観点から、好ましい添加量の下限は全封止剤中の30重量%、より好ましくは50重量%であり、好ましい添加量の上限は全封止剤中の80重量%、より好ましくは70重量%である。

(老化防止剤) 本発明の封止剤には老化防止剤を添加してもよい。老化防止剤としては、一般に用いられている老化防止剤、たとえばクエン酸やリン酸、硫黄系老化防止剤等が挙げられる。硫黄系老化防止剤としては、メルカプタン類、メルカプタンの塩類、スルフィドカルボン

酸エステル類や、ヒンダードフェノール系スルフィド類を含むスルフィド類、ポリスルフィド類、ジチオカルボン酸塩類、チオウレア類、チオホスフェイト類、スルホニウム化合物、チオアルデヒド類、チオケトン類、メルカプタール類、メルカプトール類、モノチオ酸類、ポリチオ酸類、チオアミド類、スルホキシド類等が挙げられる。

【0194】また、これらの老化防止剤は単独で使用するでもよく、2種以上併用してもよい。

（ラジカル禁止剤）本発明の封止剤にはラジカル禁止剤を添加してもよい。ラジカル禁止剤としては、例えば、2, 6-ジ-*t*-ブチル-3-メチルフェノール（BHT）、2, 2'-メチレン-ビス（4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール）、テトラキス（メチレン-3（3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオネート）メタン等のフェノール系ラジカル禁止剤や、フェニル-β-ナフチルアミン、α-ナフチルアミン、N, N'-第二ブチル-p-フェニレンジアミン、フェノチアジン、N, N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン等のアミン系ラジカル禁止剤等が挙げられる。

【0195】また、これらのラジカル禁止剤は単独で使用するでもよく、2種以上併用してもよい。

（紫外線吸収剤）本発明の封止剤には紫外線吸収剤を添加してもよい。紫外線吸収剤としては、例えば2（2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-*t*-ブチルフェニル）ベンゾトリアゾール、ビス（2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジン）セバケート等が挙げられる。

【0196】また、これらの紫外線吸収剤は単独で使用するでもよく、2種以上併用してもよい。

（その他添加剤）本発明の封止剤には、その他、エポキシ系等の従来の封止材の充填材として使用あるいは／および提案されているものをはじめ、着色剤、離型剤、難燃剤、難燃助剤、界面活性剤、消泡剤、乳化剤、レベリング剤、はじき防止剤、イオントラップ剤、チクソ性付与剤、粘着性付与剤、保存安定改良剤、オゾン劣化防止剤、光安定剤、増粘剤、可塑剤、反応性希釈剤、酸化防止剤、熱安定化剤、導電性付与剤、帯電防止剤、放射線遮断剤、核剤、リン系過酸化水素分解剤、滑剤、顔料、金属不活性化剤、熱伝導性付与剤、物性調整剤等を本発明の目的および効果を損なわない範囲において添加することができる。

（溶剤）本発明の封止剤は溶剤に溶解して用いることも可能である。使用できる溶剤は特に限定されるものではなく、具体的に例示すれば、ベンゼン、トルエン、ヘキサン、ヘプタン等の炭化水素系溶媒、テトラヒドロフラン、1, 4-ジオキサン、1, 3-ジオキソラン、ジエチルエーテル等のエーテル系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン系溶媒、クロロホルム、塩化メチレン、1, 2-ジクロロ

エタン等のハロゲン系溶媒を好適に用いることができる。

【0197】溶媒としては、トルエン、テトラヒドロフラン、1, 3-ジオキソラン、クロロホルムが好ましい。

【0198】使用する溶媒量は適宜設定できるが、用いる硬化性組成物1gに対しての好ましい使用量の下限は0.1mLであり、好ましい使用量の上限は10mLである。使用量が少ないと、低粘度化等の溶媒を用いることの効果が得られにくく、また、使用量が多いと、材料に溶剤が残留して熱クラック等の問題となり易く、またコスト的にも不利になり工業的利用価値が低下する。

【0199】これらの、溶媒は単独で使用するでもよく、2種類以上の混合溶媒として用いることもできる。

（封止剤性状）本発明の封止剤としては上記したように各種組み合わせのものが使用できるが、狭い隙間への充填性が良好であるという点においては、封止剤の粘度としては、23℃において1000Pa・s以下であることが好ましく、10Pa・s以下であることがより好ましく、5.0Pa・s未満であることがさらにこのましく、1.0Pa・s以下であることが特に好ましく、0.1以下であることが特に好ましい。また、同じ理由で、100℃において10Pa・s以下であることが好ましく、1.0Pa・s以下であることがより好ましく、0.1Pa・s以下であることがさらに好ましい。

【0200】粘度の温度依存性（チクソ性）についても種々のものが使用できる。

【0201】粘度はE型粘度計によって測定することができる。

【0202】隙間への浸透速度としては、23℃における50μmの隙間への浸透時間が600秒/cm以下であることが好ましく、120秒/cm以下であることがより好ましい。また、23℃における25μmの隙間への浸透時間が600秒/cm以下であることが好ましく、180秒/cm以下であることがより好ましい。また、60℃における50μmの隙間への浸透時間が120秒/cm以下であることが好ましく、60秒/cm以下であることがより好ましい。また、60℃における25μmの隙間への浸透時間が180秒/cm以下であることが好ましく、120秒/cm以下であることがより好ましい。また、100℃における50μmの隙間への浸透時間が60秒/cm以下であることが好ましく、30秒/cm以下であることがより好ましい。また、100℃における25μmの隙間への浸透時間が120秒/cm以下であることが好ましく、60秒/cm以下であることがより好ましい。

【0203】隙間への浸透時間は下記の方法により測定する。図1に示すように、ガラス板の上に2枚のアルミ箔スペーサー（厚み50μmあるいは25μm）を15mm隔てて並行に配置し、この間にまたがるように18

mm幅のカバーガラスを積載した後、粘着テープによりガラス板、アルミ箔スペーサー及びカバーガラスを固定する。このようにしてガラス板、アルミ箔及びカバーガラスにより15mm×18mm×50μmあるいは25μmの空間を調製する。このものをホットプレート上に静置して設定温度に調整した後、図1に示すように隙間の一辺に封止剤を垂らしてからその一辺から1cmの位置に浸透した封止剤が到達するまでの時間を測定して隙間浸透時間とする。

【0204】封止剤の硬化性については、任意に設定できるが、120℃におけるゲル化時間が120秒以内であることが好ましく、60秒以内であることがより好ましい。また、150℃におけるゲル化時間が60秒以内であることが好ましく、30秒以内であることがより好ましい。また、100℃におけるゲル化時間が180秒以内であることが好ましく、120秒以内であることがより好ましい。硬化性が遅い場合には封止剤としての作業性が悪くなる。逆に速い場合には貯蔵安定性が悪くなりやすい場合もある。

【0205】この場合のゲル化時間は、以下のようにして調べられる。設定温度に調整したホットプレート上に厚み50μmのアルミ箔を置き、その上に封止剤100mgを垂らしてゲル化するまでの時間を測定してゲル化時間とする。

(硬化) 本発明の封止剤は、あらかじめ混合し硬化性組成物中のSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合とSiH基の一部または全部およびを反応させることによって硬化させて、半導体装置のための材料として用いることができる。

【0206】封止剤を反応させて硬化させる場合において、(A)、(B)、(C)、(D)各成分の必要量を一度に混合して反応させてもよいが、一部を混合して反応させた後残量を混合してさらに反応させる方法や、混合した後反応条件の制御や置換基の反応性の差の利用により組成物中の官能基の一部のみを反応(Bステージ)させてから成形等の処理を行いさらに硬化させる方法をとることもできる。これらの方法によれば成形時の粘度調整が容易となる。

【0207】硬化させる方法としては、単に混合するだけで反応させることもできるし、加熱して反応させることもできる。反応が速く、一般に耐熱性の高い材料が得られやすいという観点から加熱して反応させる方法が好ましい。

【0208】硬化温度としては種々設定できるが、好ましい温度の下限は30℃、より好ましくは100℃であり、好ましい温度の上限は300℃、より好ましくは200℃である。反応温度が低いと十分に反応させるための反応時間が長くなり、反応温度が高いと成形加工が困難となりやすい。

【0209】硬化は一定の温度で行ってもよいが、必要

に応じて多段階あるいは連続的に温度を変化させてもよい。一定の温度で行うより多段階的あるいは連続的に温度を上昇させながら反応させた方が歪のない均一な硬化物が得られやすいという点において好ましい。

【0210】硬化時間も種々設定できるが、高温短時間で反応させるより、比較的低温長時間で反応させた方が歪のない均一な硬化物が得られやすいという点において好ましい。

【0211】反応時の圧力も必要に応じ種々設定でき、常圧、高圧、あるいは減圧状態で反応させることもできる。場合によって発生する揮発分を除きやすい、細部への充填性が良好であるという点においては、減圧状態で硬化させることが好ましい。

【0212】封止剤が使用される製造工程において、封止剤中へのボイドの発生および封止剤からのアウトガスによる工程上の問題が生じ難いという観点においては、硬化中の重量減少が5重量%以下であることが好ましく、3重量%以下であることがより好ましく、1%以下であることがさらに好ましい。

【0213】硬化中の重量減少は以下のように調べられる。熱重量分析装置を用いて封止剤10mgを室温から150℃まで10℃/分の昇温速度で昇温して、減少した重量の初期重量の割合として求めることができる。

【0214】また、電子材料へのシリコン汚染の問題を起こし難いという点においては、この場合の揮発成分中のSi原子の含有量が1%以下であることが好ましい。

(硬化物性状) 本発明の封止剤は、高伸びであり耐熱応力性が高くなるという点においては、封止剤を硬化させて得られる硬化物の引張破断伸びが2%以上であることが好ましく、3%以上であることがより好ましく、4%以上であることがさらに好ましく、5%以上であることが特に好ましく、10%以上であることが最も好ましい。

【0215】引張破断伸びは、以下の方法で測定することができる。厚さ3mmの板状硬化物より6×55×3mmの短冊を切り出し、r=1.0mm深さ1mmのUノッチを長辺方向の中央付近に両側より刻み図2のような試験片とする。23℃50%RHの環境下に置かれたオートグラフを用いて、チャック間距離を15mmとし、試験片のUノッチ部がチャック間の中央付近になるようにその両端をチャックで挟み、1mm/分の速度で引張り試験を行なう。このときの試験片が破断するまでの変位をチャック間距離で除して引張破断伸びとする。

【0216】耐熱性が良好であるという観点からは、封止剤を硬化させて得られる硬化物のT_gが100℃以上となるものが好ましく、150℃以上となるものがより好ましい。

【0217】一方で、低応力であり、耐熱応力性が高いという観点からは、封止剤を硬化させて得られる硬化物

のTgが100℃未満であるものが好ましく、80℃以下であるものがより好ましい。この場合、Tgは以下のようにして調べられる。3mm×5mm×30mmの角柱状試験片を用いて引張りモード、測定周波数10Hz、歪0.1%、静/動力比1.5、昇温側度5℃/分の条件にて測定した動的粘弾性測定（アイティー計測制御社製DVA-200使用）のtanδのピーク温度をTgとする。

【0218】また、封止剤として使用された場合に封止した配線等にイオンマイグレーション等の問題が生じ難く信頼性が高くなるという点においては、硬化物からの抽出イオン含有量が10ppm未満であることが好ましく、5ppm未満であることがより好ましく、1ppm未満であることがさらに好ましい。

【0219】この場合、抽出イオン含有量は以下のようにして調べられる。裁断した硬化物1gを超純水50mlとともにテフロン(R)製容器に入れて密閉し、121℃、2気圧、20時間の条件で処理する。得られた抽出液をICP質量分析法（横河アナリティカルシステムズ社製HP-4500使用）によって分析し、得られたNaおよびKの含有量の値を、用いた硬化物中の濃度に換算して求める。一方同じ抽出液をイオンクロマト法（ダイオネクス社製DX-500使用、カラム：AS12-SC）によって分析し、得られたClおよびBrの含有量の値を、用いた硬化物中の濃度に換算して求める。以上のように得られたNa、K、Cl、Brの硬化物中の含有量を合計して抽出イオン含有量とする。

（封止対象）本発明の封止剤を用いて半導体、電子部品、電子回路、あるいは電気接点を封止することができる。

【0220】半導体としては通常のシリコンをベースとしたもののみではなく、ガリウム、インジウム、ゲルマニウム、亜鉛等種々の金属をベースとしたものを含む。その他、有機半導体も含む。素子としてはトランジスタ、抵抗、ダイオード等の他、発光ダイオード、半導体レーザー等の発光素子や、各種センサー等の受光素子、さらには太陽電池等も含む。また、メモリー、論理回路などの各種IC、LSI等も含まれる。半導体の形状としても通常の平板状、ブロック状のもの、薄膜状、ボール状のもの（ボールセミコンダクター）のもの等も含まれる。半導体大きさについても種々適用可能であり、例えば0.3mm角のような小さなものから、25mm角あるいは100mm角のような大型のものでもよい。その他半導体上に設けられたパッシベーション膜等の保護膜や、ハンダバンプ、金バンプ、アルミパッド等の接続部位等についても適宜設定できる。

【0221】電子部品としてはライバクトランス、コンデンサ等の他、自動車周辺電子部品、液晶周辺電子部品、電池周辺電子部品、有機EL（エレクトロルミネセンス）周辺電子部品、光記録周辺電子部品等も含む。

自動車周辺電子部品としては、例えば、イグニッションコイル、燃料供給等の各種電子制御用の電子部品、計器部品、照明部品等が挙げられる。液晶周辺電子部品としては、例えば、偏光子、カラーフィルター、TFTのトランジスタ、透明導電膜、液晶等の他、液晶表示装置も含まれる。電池周辺電子部品としては、例えば、太陽電池基板、リチウムイオン電池、燃料電池等が挙げられる。有機EL（エレクトロルミネセンス）周辺電子部品としては、有機EL基板等が挙げられる。光記録周辺電子部品としては、VD（ビデオディスク）、CD/CD-ROM、CD-R/RW、DVD-R/DVD-RAM、MO/MD、PD（相変化ディスク）、光カード用等のディスク基板、発光部品、ピックアップレンズ、受光部品等が挙げられる。

【0222】電気回路としては、リジッドプリント基板、フレキシブルプリント基板、ビルドアップ基板の他光電子回路等が挙げられる。

【0223】電気接点としては基板とケーブルの接続点、ケーブルとケーブルの接続点あるいは基板同士の接続点、基板と素子の接続点、ケーブルと素子の接続点などが挙げられる。

（封止方法）封止する方法もエポキシ系等の従来の封止材の封止方法として使用あるいは／および提案されているものをはじめ、種々の方法をとることができる。例えば、キャストリング、ポットリング、ディッピング、プレス、コーティング、あるいはスクリーン印刷によって封止することもできるし、トランスファーモールドなどのようにモールドリング封止することもできる。また、ディスペンスした後隙間に浸透させる方法（アンダーフィル）によっても封止することができる。

【0224】封止時に必要に応じ各種処理を施すこともできる。例えば、封止時に発生するボイドの抑制のために封止剤あるいは一部反応させた封止剤を遠心、減圧などにより脱泡する処理などを適用することもできるし、封止した後に脱泡することもできる。

【0225】封止する際の圧力条件も種々設定でき、常圧、減圧、加圧いずれの方法も適用できる。アンダーフィル等隙間に浸透させる場合や、微細部位への浸透性を高めたい場合等には減圧で実施することが有効であることがある。圧力は一定でもよいし、必要に応じて経時的に連続あるいは段階的に変化させてもよい。

【0226】封止する場合の温度も種々設定できる。アンダーフィル等隙間に浸透させる場合や、微細部位への浸透性を高めたい場合等には加温状態で実施することが有効であることがある。この場合例えば、50℃～200℃の温度が適用できる。温度は一定でもよいし、必要に応じて経時的に連続あるいは段階的に変化させてもよい。

（封止剤の具体例）以下に封止剤の具体的な例を挙げるが、本発明の封止剤はこれに限定されるものではない。

【0227】半導体の封止剤としては、コンデンサ、トランジスタ、ダイオード、発光ダイオード、IC、LSI、センサー等をカスティング、ポッティング、ディッピング、トランスファーモールド、コーティング、スクリーン印刷等で封止するための封止剤が挙げられ、より具体的には発光ダイオード、IC、LSI、センサー等のCOB、COF、TABといったポッティング封止剤、フリップチップのアンダーフィル（キャピラリーフロータイプおよびコンプレッションフロータイプ）、BGA、CSP等のICパッケージ類実装時の封止剤（補強用アンダーフィル）、スタックドIC用の封止剤、ウェハレベルCSP用の封止剤等を挙げることができる。その他、半導体前工程に使用されるパッシベーション膜、ジャンクションコート膜、バッファコート膜等の各種保護膜も半導体の封止剤の例である。

【0228】電子部品の封止剤としては、偏向板、カラーフィルター、TFTのトランジスタ、透明導電膜、液晶表示装置の保護コーティング剤や、セルに充填した液晶の封止剤、太陽電池の保護コーティング剤、リチウムイオン電池や燃料電池の封止剤、有機EL（エレクトロルミネッセンス）の保護コーティング剤、光記録用光源、受光素子のコーティング剤や封止剤、さらに自動車の電子部品周辺の保護コーティング剤、封止剤も挙げられる。

【0229】電子回路の封止剤としては、リジッドプリント基板、フレキシブルプリント基板材料、ビルドアップ基板のソルダーレジスト、保護コーティング剤等が挙げられる。

【0230】電気接点の封止剤としては、基板と素子や基板と基板や基板とケーブル等の接点保護（コーティング）剤、ジャンクションコーティング剤等が挙げられる。

（半導体装置）本発明の封止剤を用いて上記したような方法によって半導体を封止することによって半導体装置を製造することができる。この場合、本発明の封止剤を上記したような用途に使用し、通常の方法によって半導*

* 体装置を製造すればよい。

【0231】半導体装置とは、各種半導体を含む装置であり、例えば、一般にDIP、QFP、SOP、TSOP、PGA、CSP、BGA、PIレジンやセラミックやBTレジンやFR4等各種サブストレートを用いたFCBGA、QFN、COB、COF、TAB、ウェハレベルCSP、スタックドパッケージ、BCC、MCM、SIP等と称されるの各種ICパッケージや、発光ダイオード部品、光センサー部品、およびそれらが搭載された基板、モジュール等が挙げられる。

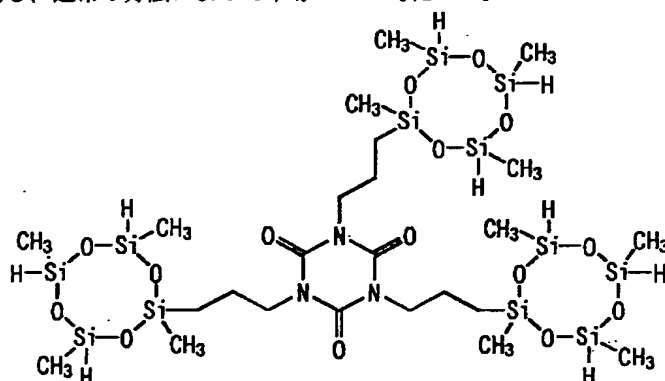
【0232】

【実施例】以下に、本発明の実施例および比較例を示すが、本発明は以下によって限定されるものではない。

（合成例1）5Lの四つ口フラスコに、攪拌装置、滴下漏斗、冷却管をセットした。このフラスコにトルエン1800g、1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン1440gを入れ、120℃のオイルバス中で加熱、攪拌した。トリアリルイソシアヌレート200g、トルエン200g及び白金ビニルシロキサン錯体のキシレン溶液（白金として3wt%含有）1.44mlの混合液を50分かけて滴下した。得られた溶液をそのまま6時間加熱、攪拌した後、未反応の1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン及びトルエンを減圧留去した。¹H-NMRによりこのものは1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサンのSiH基の一部がトリアリルイソシアヌレートと反応したものであることがわかった（反応物Aと称する）。また、1, 2-ジブロモメタンを内部標準に用いて¹H-NMRによりSiH基の含有量を求めたところ、8.08mmol/gのSiH基を含有していることがわかった。生成物は混合物であるが、本発明の（B）成分である下記のを主成分として含有している。また、本発明の（C）成分である白金ビニルシロキサン錯体を含有している。

【0233】

【化37】

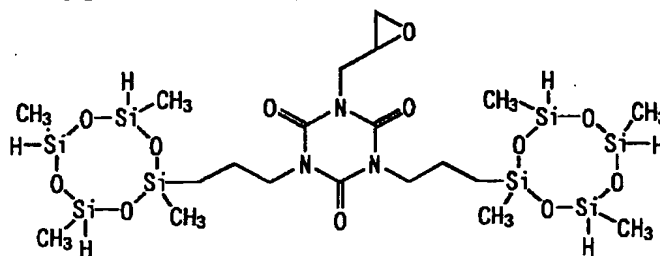


（合成例2）5Lの四つ口フラスコに、攪拌装置、滴下漏斗、冷却管をセットした。このフラスコにトルエン1

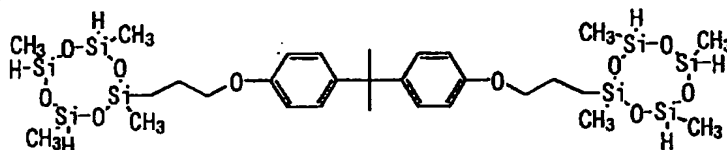
380g、1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン1356gを入れ、105℃のオイルバス中

63

で加熱、攪拌した。ジアリルモノグリシジルイソシアヌレート300g、トルエン300g及び白金ビニルシロキサン錯体のキシレン溶液（白金として3wt%含有）1.36mlの混合液を30分かけて滴下した。得られた溶液をそのまま1時間加温、攪拌した後、未反応の1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン及びトルエンを減圧留去した。¹H-NMRによりこのものは1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサンのSiH基の一部がジアリルモノグリシジルイソシアヌレートと反応したものであることがわかった（反※10



（合成例3）1Lの四つ口フラスコに、攪拌装置、冷却管、滴下漏斗をセットした。このフラスコにトルエン150g、白金ビニルシロキサン錯体のキシレン溶液（白金として3wt%含有）15.6μL、1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン500gを加えてオイルバス中で70℃に加温、攪拌した。ビスフェノールAジアリルエーテル64gをトルエン40gで希釈して滴下漏斗から滴下した。同温で60分攪拌後放冷し、ベンゾチアゾール4.74mgを添加した。未反応の1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサンおよびトルエンを減圧留去した。¹H-NMRによりこのものは1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラ※30



（合成例4）1Lの四つ口フラスコに、磁気攪拌子、滴下漏斗、冷却管をセットした。このフラスコにトルエン200g、1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン200gを入れ、窒素雰囲気下オイルバス中で50℃に加熱、攪拌した。アリルグリシジルエーテル95.0g、白金ビニルシロキサン錯体のキシレン溶液（白金として3wt%含有）31.5μL、トルエン50gの混合物を滴下漏斗から、30分かけて滴下した。1時間同温で加熱した後、未反応の1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサンおよびトルエンを減圧留去した。¹H-NMRによりこのものは1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサンのSiH

64

※底物Bと称する）。また、1,2-ジブロモメタンを内部標準に用いて¹H-NMRによりSiH基の含有量を求めたところ、8.73mmol/gのSiH基を含有していることがわかった。生成物は混合物であるが、本発明の（B）成分である下記のものを主成分として含有している。また、本発明の（C）成分である白金ビニルシロキサン錯体を含有している。

【0234】

【化38】

※シロキサンのSiH基の一部がビスフェノールAジアリルエーテルと反応したものであることがわかった（反応物Cと称する）。また、1,2-ジブロモメタンを内部標準に用いて¹H-NMRによりSiH基の含有量を求めたところ、7.51mmol/gのSiH基を含有していることがわかった。生成物は混合物であるが、本発明の（B）成分である下記のものを主成分として含有している。また、本発明の（C）成分である白金ビニルシロキサン錯体を含有している。

【0235】

【化39】

基の一部がアリルグリシジルエーテルとヒドロシリル化反応したものであることがわかった（反応物Dと称する）。また、1,2-ジブロモメタンを内部標準に用いて¹H-NMRによりSiH基の含有量を求めたところ、6.63mmol/gのSiH基を含有していることがわかった。生成物は混合物であるが、本発明の（B）成分である下記のものを主成分として含有している。また、本発明の（C）成分である白金ビニルシロキサン錯体を含有している。

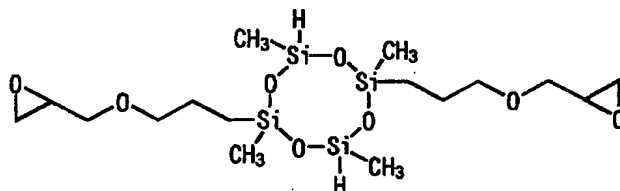
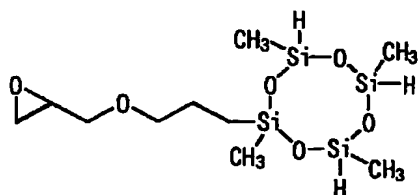
【0236】

【化40】

(34)

65

66



(実施例1～10、比較例1) (A) 成分としてSiH基と反応性を有する炭素-炭素二重結合を1分子中に少なくとも2個含有する各種の有機化合物を用い、(B) 成分として合成例1～5で合成した反応物A～Eを用い、(C) 成分として白金ビニルシロキサン錯体を用い、表に示した配合で封止剤を作成した。

【0237】これらの封止剤を用いて粘度、隙間浸透時間、硬化中の重量減少、ゲル化時間、接着性を測定し

た。

【0238】これらの封止剤を軟膏缶に3mmの深さとなるように入れ、表に示した硬化条件で段階的に加熱を行い硬化物を得た。この硬化物を用いて引張破断伸び、Tg、抽出イオン含有量を測定した。

20 【0239】

【表1】

制御社製DVA-200使用)の $\tan \delta$ のピーク温度により求めた。

【0245】抽出イオン含有量：裁断した硬化物約1gを超純水50mlとともにテフロン(R)製容器に入れて密閉し、121℃、2気圧、20時間の条件で処理した。得られた抽出液をICP質量分析法(横河アナリティカルシステムズ社製HP-4500使用)によって分析し、得られたNaおよびKの含有量の値を、用いた硬化物中の濃度に換算して求めた。一方同じ抽出液をイオンクロマト法(ダイオネクス社製DX-500使用、カラム:AS12-SC)によって分析し、得られたClおよびBrの含有量の値を、用いた硬化物中の濃度に換算して求めた。以上のように得られたNa、K、Cl、Brの硬化物中の含有量を合計して抽出イオン含有量とした。

【0246】接着性：作成した封止剤をガラス板上に100 μ mの厚みに塗布し、120℃/1時間の条件で加熱硬化させた。得られた塗膜をJISK5400に規定されている方法によって基盤目テープ法で接着性を調べ*

た。基盤目としては1mm角の10x10のマスを用い、剥がれたマスがあったものを×、全くはがれなかったものを○とした。

【0247】また、これらの封止剤を隙間浸透時間測定に用いた50 μ mの隙間に充填したものを、150℃の熱風オーブン中で10分間加熱したところ硬化物となった。

【0248】

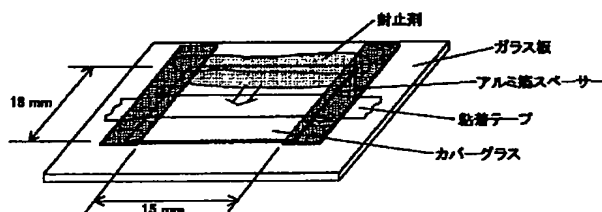
【発明の効果】本発明の封止剤は高い接着性を有し、低粘度、低温速硬化性であり封止剤として優れた特性を有している。従って、これを用いて実用性の高い半導体装置を製造することができる。

【図面の簡単な説明】

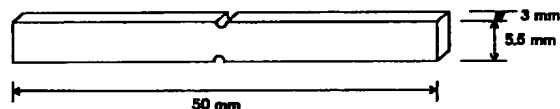
【図1】本発明に係る隙間への浸透時間の測定に用いる治具の斜視図である。

【図2】本発明に係る封止剤を硬化させて得られる硬化物の引張破断伸びを測定するための試験片の斜視図である。

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

H01L 23/31

識別記号

F I

ターム(参考)

(72)発明者 井手 正仁

大阪府摂津市鳥飼西5丁目2-23浩然寮D
202

Fターム(参考) 4J002 AF022 BK002 CC032 CD002

CP041 DA067 DE197 ED056

EF019 EF069 EF119 EF129

EH076 EH106 EU196 EY018

EZ007 FD149 FD342 GQ01

4M109 AA01 BA03 CA04 EA02 EB02

EB04 EB06 EB07 EB08 EB09

EB11 EB18 EC05

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-268239

(43)Date of publication of application : 25.09.2003

(51)Int.Cl.

C08L 83/05
C08K 5/00
C08L 63/00
C08L101/00
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 2002-075292

(71)Applicant : KANEGAFUCHI CHEM IND CO LTD

(22)Date of filing : 19.03.2002

(72)Inventor : OUCHI KATSUYA
FUJITA MASAYUKI
TSUMURA MANABU
IDE MASAHIRO

(54) SEALANT, METHOD FOR SEALING SEMICONDUCTOR OR THE LIKE, METHOD FOR PRODUCING SEMICONDUCTOR DEVICE, AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a highly practical sealant which has high adhesiveness, low viscosity, and low temperature rapid curing performance; a method for sealing an electronic parts, an electric circuit, an electric contact or a semiconductor by using the sealant; a method for producing a semiconductor device; and a semiconductor device wherein a semiconductor is sealed by the sealant.

SOLUTION: The sealant comprises as essential components (A) an organic compound having at least two carbon-carbon double bonds reactive with an SiH group in one molecule, (B) a compound having at least two SiH groups in one molecule, and (D) an adhesive agent.

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.*** shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1](A) Encapsulant containing an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule, a compound which contains at least two SiH groups in one molecule (B), the (C) hydrosilylation catalyst, and (D) adhesion grant agent as an essential ingredient.

[Claim 2](D) The encapsulant according to claim 1 which is a compound in which an ingredient contains an epoxy group in a molecule.

[Claim 3]The encapsulant according to claim 2 which furthermore contains a silanol condensation catalyst as a (E) ingredient.

[Claim 4](E) The encapsulant according to claim 3 whose silanol condensation catalysts of an ingredient are a boron system compound or/and an aluminum system compound or/, and a titanium system compound.

[Claim 5]The encapsulant according to any one of claims 2 to 4 which furthermore contains carboxylic acid or/, and acid anhydrides as a (F) ingredient.

[Claim 6]The encapsulant according to any one of claims 1 to 5 used in order to close a semiconductor.

[Claim 7]Under-filling which consists of the encapsulant according to claim 6.

[Claim 8]Electronic parts closing electronic parts, an electric circuit, or electric contact with encapsulant of a statement in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 5, an electric circuit, a sealing method of electric contact.

[Claim 9]A sealing method of a semiconductor closing a semiconductor by encapsulant according to claim 6 or the under-filling according to claim 7.

[Claim 10]A manufacturing method of a semiconductor device closing a semiconductor by encapsulant according to claim 6 or the under-filling according to claim 7.

[Claim 11]A semiconductor device with which encapsulant according to claim 6 or the under-filling according to claim 7 comes to close a semiconductor.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to encapsulant and a still more detailed high adhesive property is shown. Are hypoviscosity and low-temperature fast curability and by the high encapsulant of practicality, and it Electronic parts, it is related with the sealing method of the electronic parts which close an electric circuit, electric contact, or a semiconductor, an electric circuit, or a semiconductor or the manufacturing method of a semiconductor device, and the semiconductor device with which it comes to close a semiconductor.

[0002]

[Description of the Prior Art] As encapsulant, especially encapsulant for semiconductors, the epoxy resin composition which used the polyfunctional epoxy compound, the phenol novolac system hardening agent, and the inorganic filler as the main ingredients is used widely. With the miniaturization demand of a semiconductor package, etc. in recent years TAB closure, Liquefied encapsulants including the under-filling closure for flip chip bonding, etc. are used, and the epoxy resin composition which mainly used the epoxy compound, the acid anhydride system hardening agent, and the inorganic filler as the main ingredients is widely used for these liquefied encapsulants. The fundamental characteristic required of such encapsulants is heat resistance, an adhesive property, etc. which do not make parts produce fault also by heat histories, such as a solder reflow.

[0003] Generally, hardening takes an elevated temperature and a long time to an epoxy resin composition, manufacture of a semiconductor package etc. is difficult for it, and although a manufacturing cycle may become long, in order to manufacture easily, to make a cycle quick and to reduce a manufacturing cost, low-temperature fast curability is demanded. In liquefied encapsulant, the high-speed perviousness to the slit by the further fluid improvement by enlargement of a semiconductor and densification, etc. is called for.

[0004] In order to improve low-temperature fast curability and high-speed perviousness which were described above, various improvement is proposed in the epoxy resin (JP.5-222270.A, JP.6-5743.A, JP.6-206982.A, JP.7-165876.A, JP.9-31161.A, JP.9-246435.A, JP.10-101906.A, JP.11-21421.A, JP.11-92549.A, JP.11-140069.A, JP.11-255864.A, JP.11-256012.A, JP.11-269250.A, JP.2000-3982.A, JP.2000-7891.A, JP.2000-53444.A, JP.2000-63630.A).

[0005] On the other hand, the hardenability constituent which generally used the hydrosilylation reaction with quick hardenability for the hardening reaction is also proposed (JP.50-100.A, JP.9-291214.A, JP.1-126336.A, JP.5-295270.A).

[0006] A high adhesive property is required of encapsulant.

[0007]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Therefore, the encapsulant whose practicality the purpose of this invention shows a high adhesive property, and are hypoviscosity and low-temperature fast curability, and is high, it is providing the sealing method of the electronic parts which close electronic parts, an electric circuit, electric contact, or a semiconductor by it, an electric circuit, or a semiconductor or the manufacturing method of a semiconductor device, and the semiconductor device with which it comes to close a semiconductor.

[0008]

[Means for Solving the Problem] An organic compound in which this invention persons contain wholeheartedly a carbon-carbon double bond which has the (A) SiH group and reactivity in [at least two] one molecule as a result of research in order to solve this technical problem, (B) By containing a compound and (D) adhesion grant agent which contain at least two SiH groups in one molecule as an essential ingredient, it found out that an aforementioned problem was solvable and resulted in this invention.

[0009] Namely, an organic compound in which this invention contains a carbon-carbon double bond which has the (A) SiH group and reactivity in [at least two] one molecule, (B) A compound, the (C) hydrosilylation catalyst which contain at least two SiH groups in one molecule, (D) It is the encapsulant (claim 1) containing an adhesion grant agent as an essential ingredient, (D) An ingredient is the encapsulant (claim 2) according to claim 1 which is a compound which contains an epoxy group in a molecule, It is the encapsulant (claim 3) according to claim 2 which furthermore contains a silanol condensation catalyst as a (E) ingredient, (E) A silanol condensation catalyst of an ingredient is the encapsulant (claim 4) according to claim 3 which are a boron system compound or/and an aluminum system compound or/, and a titanium system compound. Furthermore, contain carboxylic acid or/, and acid anhydrides as a (F) ingredient. It is the encapsulant (claim 5) according to any one of claims 2 to 4, Are the encapsulant (claim 6) according to any one of claims 1 to 5 used in order to close a semiconductor, are under-filling (claim 7) which consists of the encapsulant according to claim 6, and with encapsulant of a statement in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 5 Electronic parts, an electric circuit, Or electronic parts, an electric circuit closing electric contact, It is a sealing method (claim 8) of electric contact, and is a sealing method (claim 9) of a semiconductor closing a semiconductor by encapsulant according to claim 6 or the under-filling according to claim 7. It is a manufacturing method (claim 10) of a semiconductor device closing a semiconductor by encapsulant according to claim 6 or the under-filling according to claim 7, It is a semiconductor device (claim 11) with which encapsulant according to claim 6 or the under-filling according to claim 7 comes to close a semiconductor.

[0010]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, this invention is explained in detail.

(A) ingredient] The (A) ingredient in this invention is explained first.

[0011] (A) Especially if an ingredient is an organic compound which contains the carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule, it will not be limited. It is preferred that it is what does not include siloxane units (Si-O-Si) like polysiloxane organicity block copolymer or a polysiloxane organicity graft copolymer as an organic compound, and contains only C, H, N, O, S, and halogen as a composing element. In the case of a thing including siloxane units, there is a problem of gas permeation nature or crawling.

[0012] The connecting position in particular of the carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity is not limited, but may exist anywhere in intramolecular.

[0013] (A) The organic compound of an ingredient can be classified into the compound and organic monomer system compound of an organic polymer system.

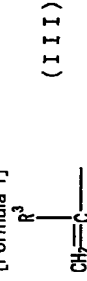
[0014] As an organic polymer system compound, for example, a polyether system, a polyester system. The compound of a polyarylate system, a polycarbonate system, a saturated hydrocarbon system, an unsaturation hydrocarbon system, a polyacrylic ester system, a polyamide system, a phenolformaldehyde system (phenol resin system), and a polyimide system can be used.

[0015] As an organic monomer system compound, compounds, these mixtures, etc. of an aliphatic hydrocarbon system: heterocyclic system, such as aromatic hydrocarbon system: straight chain systems, such as a phenol system, a bisphenol system, benzene, and naphthalene, and an alicycle system, are mentioned.

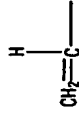
[0016] (A) Although not limited especially as a carbon-carbon double bond which has a SiH group of an ingredient, and reactivity, it is following general formula (III).

[0017]

[Formula 1]



(R³ in a formula expresses a hydrogen atom or a methyl group.) — the basis shown is preferred from a reactant point. From the ease of acquisition of a raw material. [0018]
[Formula 2]



Especially **** shown is preferred.

[0019](A) As a carbon-carbon double bond which has a SiH group of an ingredient, and reactivity, it is following general formula (IV).

[0020]

[Formula 3]



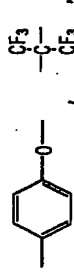
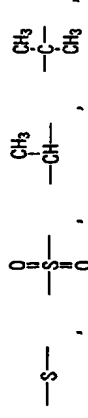
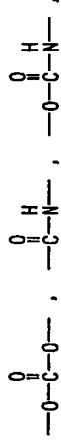
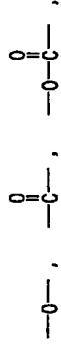
(R⁴ in a formula expresses a hydrogen atom or a methyl group.) — the alicyclic basis shown is preferred from the point that the heat resistance of a hardened material is high. From the ease of acquisition of a raw material. [0021]

[Formula 4]

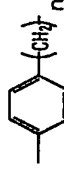


Especially the alicyclic basis shown is preferred.

[0022]The carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity may be coupled directly with the skeletal part of the (A) ingredient, and the covalent bond may be carried out via the substituent more than divalent. Especially if it is a substituent of the carbon numbers 0-10 as a substituent more than divalent, it will not be limited, but C, H, N, O, S, and the thing containing only halogen are preferred as a composing element. As the example of these substituents, [0023]
[Formula 5]



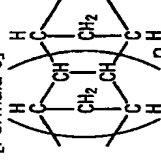
(nは1～10の数を表す。)



(nは0～4の数を表す。)

[0024]

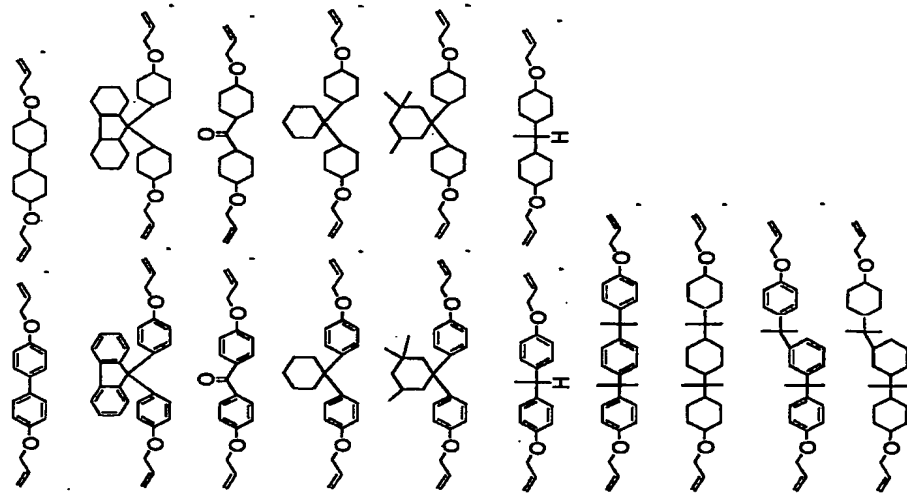
[Formula 6]



(nは0～4の数を表す。)

*****. Two or more of the substituents more than divalent [these] are connected by a covalent bond, and they may constitute the substituent more than divalent [one].

[0025]As an example of the basis which carries out a covalent bond to the above skeletal parts, A vinyl group, an allyl group, a metallyl group, an acrylic group, a methacrylic group, a 2-hydroxy-3-(allyloxy)propyl group, 2-allyl phenyl group, 3-allyl phenyl group, 4-allyl phenyl group, A 2-(allyloxy) phenyl group, 3-(allyloxy) phenyl group, 4-(allyloxy) phenyl group, 2-(allyloxy) ethyl group, 2, and 2-bis(aryloxymethyl)butyl group, the 3-allyloxy 2, a 2-bis(aryloxymethyl)propyl group, [0026]
[Formula 7]



What transposed some or all of the Grouchy Jill group of the conventionally publicly known epoxy resin besides ** to the allyl group is mentioned.

[0030](A) The low molecular weight compound which is divided into a skeletal part and an alkenyl group as mentioned above, and is hard to express as an ingredient can also be used. As an example of these low molecular weight compounds, butadiene, isoprene, Aliphatic series chain polyene compound systems, such as octadiene and decadiene, a cyclopentadiene. Substitution aliphatic series cyclic olefin compound systems, such as aliphatic series cyclic polyene compound systems, such as cyclohexadiene, cyclo-octadiene, a dicyclopentadiene, tricyclo pentadiene, and norbornadiene, vinylcyclopentene, and a vinylcyclohexene, etc. are mentioned.

[0031](A) As an ingredient, heat resistance from a viewpoint that it may improve more. A thing containing 0.001 mol or more per g of (A) ingredient of carbon-carbon double bonds which have a SiH group and reactivity is preferred, what is contained 0.005 mol or more per g is more preferred, and what is contained 0.008 mol or more is still more preferred.

[0032](A) As for a SiH group of an ingredient, and the number of carbon-carbon double bonds which have reactivity, even if small [per molecule] on the average, it is preferred [with two pieces], although it is good to exceed 2 to improve dynamics intensity more, and it is more preferred that they are three or more pieces. (A) When a SiH group of an ingredient and the number of carbon-carbon double bonds which have reactivity are one or less per 1 intramolecular, even if it reacts to the (B) ingredient, it does not become the structure of cross linkage only by becoming graft structure.

[0033](A) It is preferred that reactivity contains one or more vinyl groups in one molecule from a viewpoint of being good, as an ingredient, and it is more preferred to contain two or more vinyl groups in one molecule. It is preferred to contain six or less vinyl groups in one molecule from a viewpoint that storage stability becomes good easily, and it is more preferred to contain four or less vinyl groups in one molecule. [0034](A) As an ingredient, from a viewpoint that dynamic heat resistance is high, and a viewpoint that there is little cobwebbing nature of raw material liquid, and a moldability and handling nature are good, less than 900 thing has a preferred molecular weight, less than 700 thing is more preferred, and less than 500 thing is still more preferred.

[0035](A) As an ingredient, in order to acquire uniform mixing with other ingredients, and good workability, as viscosity, a thing below 1000 poise is preferred in 23 **, a thing below 300 poise is more preferred, and a thing below 30 poise is still more preferred. Viscosity can be measured with E type viscosity meter.

[0036](A) What has few content of a compound which has a derivative of a phenolic hydroxyl group and/or a phenolic hydroxyl group from a viewpoint of coloring, especially control of yellowing as an ingredient is preferred. What does not contain a compound which has a derivative of a phenolic hydroxyl group and/or a phenolic hydroxyl group is preferred. With a phenolic hydroxyl group in this invention, the benzene ring, a naphthalene ring, A hydroxyl group coupled directly with an aromatic hydrocarbon core illustrated by anthracene ring etc. is shown. A derivative of a phenolic hydroxyl group shows a basis replaced in a hydrogen atom of an above-mentioned phenolic hydroxyl group by acyl groups, such as alkenyl groups, such as alkyl groups, such as a methyl group and an ethyl group, a vinyl group, and an allyl group, and an acetoxy group, etc.

[0037]While an optical property is good like a photoelastic coefficient with a low double refraction factor being low, weatherability from a viewpoint of being good. That whose component weight ratio in the (A) ingredient of an aromatic ring is 50 or less % of the weight is preferred, 40 or less % of the weight of a thing is more preferred, and 30 or less % of the weight of a thing is still more preferred. Most desirable one does not include aromatic hydrocarbon rings.

[0038]From a viewpoint that there is little coloring of a hardened material obtained, optical transparency is high, and lightfastness is high. As an ingredient, (A) A vinylcyclohexene, a dicyclopentadiene, Triallyl isocyanurate, diaryl ether of 2,2-bis(4-hydroxycyclohexyl)propane, 1,2,4-TORIBI nil cyclohexane is preferred and triallyl isocyanurate, diaryl ether of 2,2-bis(4-hydroxycyclohexyl)propane, and especially 1,2,4-TORIBI nil cyclohexane are preferred.

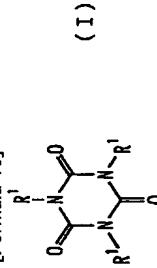
[0039](A) As an ingredient, it may have other reactant groups. As a reactant group in this case, an epoxy group, an amino group, a radical polymerization nature unsaturation group, a carboxyl group, an isocyanate group, hydroxyl, alkoxy silyl groups, etc. are mentioned. When it has these functional groups, intensity of a hardened material obtained by the adhesive property of a hardenability constituent obtained becoming high easily becomes high easily. From a point that an adhesive property can become higher, an epoxy group is preferred among these functional groups. In a point that the heat resistance of a hardened material obtained becomes high easily, it is preferred to average a reactant group and to have in [one or more] one molecule.

[0040](A) Independent, two or more sorts of things are mixed, and an ingredient can be used.

[0041](A) Following general formula (I) from a viewpoint that heat resistance and transparency are high as an ingredient

[0042]

[Formula 10]

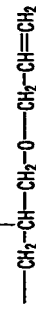
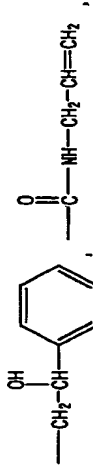
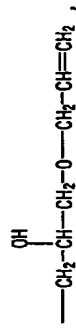
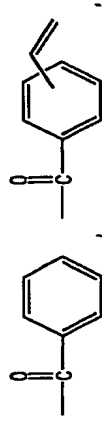
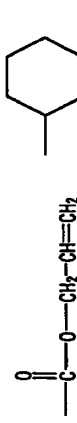
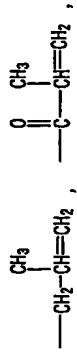
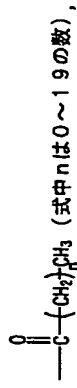
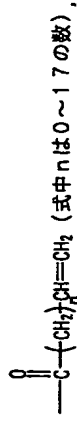
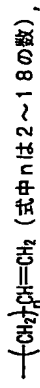
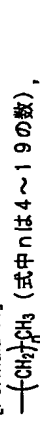


(the organic group of the monovalence of the carbon numbers 1-50 may be expressed, and each R¹ may differ or that of R¹ in a formula may be the same.) — the compound expressed is preferred.

[0043]From a viewpoint that the heat resistance of the hardened material obtained can become higher as

R¹ of the above-mentioned general formula (I). It is preferred that it is an organic group of the monovalence of the carbon numbers 1-20, it is more preferred that it is an organic group of the monovalence of the carbon numbers 1-10, and it is still more preferred that it is an organic group of the monovalence of the carbon numbers 1-4. As an example of these desirable R¹, they are a methyl group, an ethyl group, a propyl group, a butyl group, a phenyl group, benzyl, a phenethyl group, a vinyl group, an allyl group, and a glycidyl group. [0044]

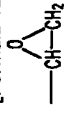
[Formula 11]



** is mentioned.

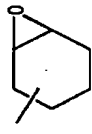
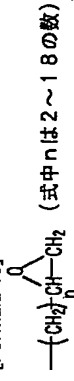
[0045] It is preferred that it is an organic group of the monovalence of the carbon numbers 1-50 in which at least one of three R¹ contains one or more epoxy groups from a viewpoint that an adhesive property with the various materials of the hardened material obtained can become good as R¹ of the above-mentioned general formula (I). [0046]

[Formula 12]



It is more preferred that it is an organic group of the monovalence of the carbon numbers 1-50 which come out and contain one or more epoxy groups expressed. As an example of these desirable R¹, it is a glycidyl group. [0047]

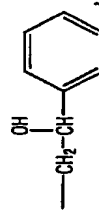
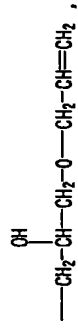
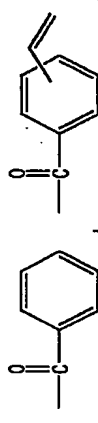
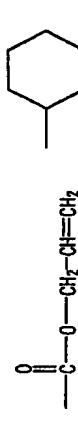
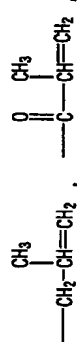
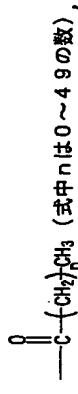
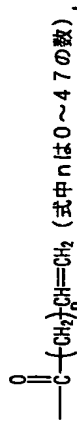
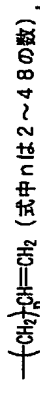
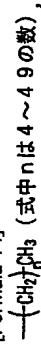
[Formula 13]



** is mentioned.

[0048] From a viewpoint that the chemical thermal stability of a hardened material obtained can become good as R¹ of the above-mentioned general formula (I). It is preferred that it is an organic group of monovalence of the carbon numbers 1-50 which contain two or less oxygen atoms, and contain only C, H, and O as a composing element, and it is more preferred that it is a hydrocarbon group of monovalence of the carbon numbers 1-50. As an example of these desirable R¹, they are a methyl group, an ethyl group, a propyl group, a butyl group, a phenyl group, benzyl, a phenethyl group, a vinyl group, an allyl group, and a glycidyl group. [0049]

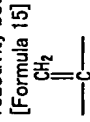
[Formula 14]



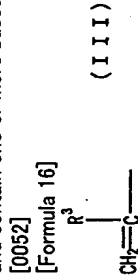
** is mentioned.

[0050] As R¹ of the above-mentioned general formula (I), it is at least one of three R¹ from a viewpoint that

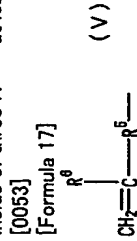
reactivity becomes good. [0051]



It is preferred that it is an organic group of the monovalence of the carbon numbers 1-50 which come out and contain one or more bases expressed, and it is following general formula (III).

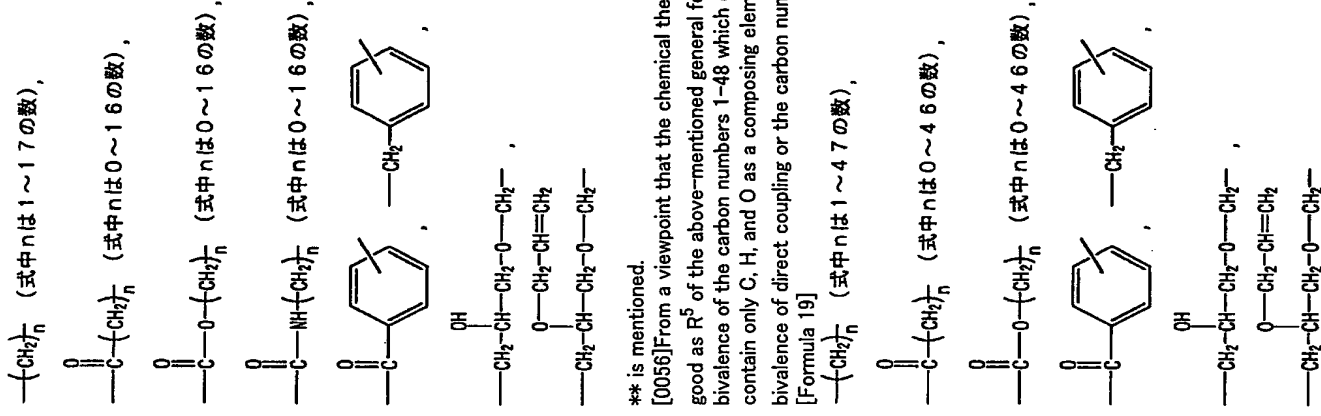
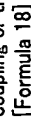


(R^2 in a formula expresses a hydrogen atom or a methyl group.) — it is more preferred that it is an organic group of the monovalence of the carbon numbers 1–50 containing one or more bases expressed — the inside of three R^1 — at least two — following general formula (V)



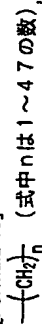
(R⁵ in a formula an organic group of bivalence of direct coupling or the carbon numbers 1-48) [express (R⁵ expresses a hydrogen atom or a methyl group. It is still more preferred that it is an organic compound (two or more R⁵ and R⁶ may differ from each other, respectively, or may be the same.) expressed.

[0054] Although R⁵ of the above-mentioned general formula (V) is an organic group of bivalence of direct coupling or the carbon numbers 1-48, From a viewpoint that the heat resistance of a hardened material obtained can become higher. It is preferred that it is an organic group of bivalence of direct coupling or the carbon numbers 1-20, it is more preferred that it is an organic group of bivalence of direct coupling or the carbon numbers 1-10, and it is still more preferred that it is an organic group of bivalence of direct coupling or the carbon numbers 1-4. As the example of these desirable R⁵ [0055]



**** is mentioned.**

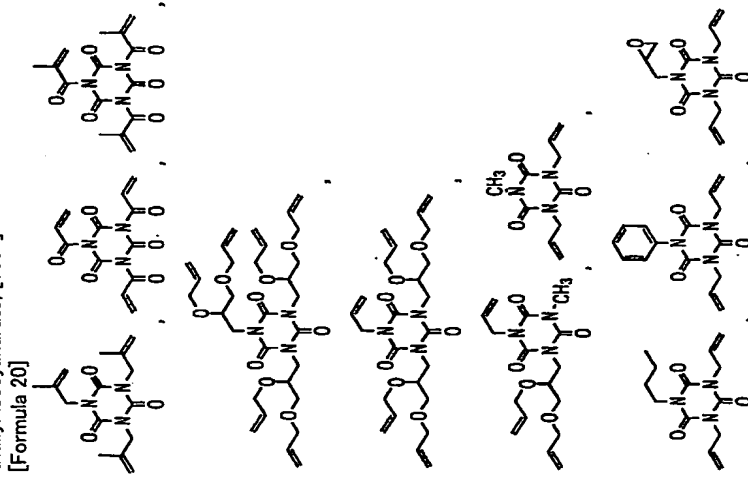
[0056] From a viewpoint that the chemical thermal stability of a hardened material obtained can become good as R⁵ of the above-mentioned general formula (V), it is preferred that it is an organic group of valence of the carbon numbers 1–48 which contain direct coupling or two oxygen atoms or less, and contain only C, H, and O as a composing element, and it is more preferred that it is a hydrocarbon group of valence of direct coupling or the carbon numbers 1–48. As the example of these desirable R⁵, [0057] [Formula 19]



[0058] Although R^6 of the above-mentioned general formula (V) is a hydrogen atom or a methyl group, from a viewpoint that reactivity is good, its hydrogen atom is preferred.

[0059] However, also in the desirable example of an organic compound expressed with the above general formula (I), it is required to contain the carbon-carbon double bond which has a SH group and reactivity in [at least two] one molecule. It is more preferred that it is an organic compound which contains the carbon-carbon double bond which has a SH group and reactivity from a viewpoint that heat resistance may be improved in [three or more] one molecule.

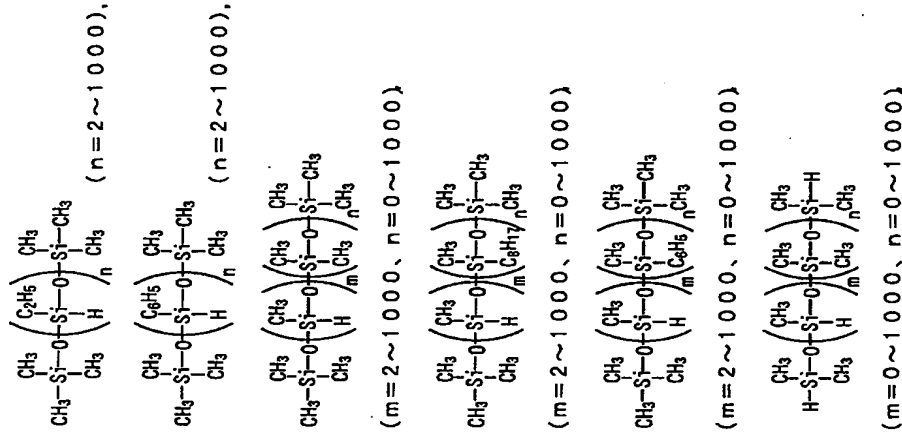
[0060] As a desirable example of an organic compound expressed with the above general formula (I), it is triallyl isocyanurate, [0061]



**** is mentioned.**

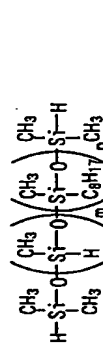
[0062] From the viewpoint of having the (B) ingredient and good compatibility, and a viewpoint of being hard to produce the problem of the outgas from encapsulant that the volatility of the (A) ingredient can become low. (A) A SiH group which was described above as an example of an ingredient, one or more sorts of compounds chosen from the organic compound which contains the carbon-carbon double bond which has reactivity in [at least two] one molecule, and a reactant with the chain and/or annular organopolysiloxane (beta) which has a SiH group are also preferred. (beta) An ingredient is a chain and/or annular polvoranosiloxane which has a SiH group (beta). (ingredient)

[0063]concrete — for example [0064]
[Formula 21]

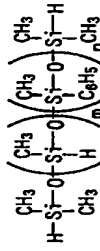


[0065]

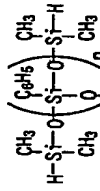
[Equation 22]



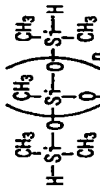
(m = 0 ~ 1 0 0 0, n = 0 ~ 1 0 0 0)



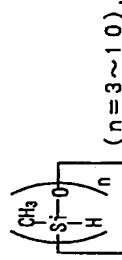
(m = 0 ~ 1 0 0 0, n = 0 ~ 1 0 0 0)



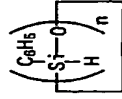
(n = 0 ~ 1 0 0 0),



(n = 0 ~ 1 0 0 0),



(n = 3 ~ 1 0).

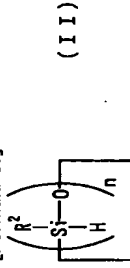


(n = 3 ~ 1 0).

[0066] From a viewpoint that the compatibility of a SiH group and the organic compound which contains the carbon-carbon double bond which has reactivity in [at least two] one molecule becomes good easily here to following general formula (II)

[0067]

[Formula 23]



(among a formula, R² expresses the organic group of the carbon numbers 1-6, and n expresses the number of 3-10.) — the annular polyorganosiloxane which is expressed and which has at least three SiH groups in one molecule is preferred.

[0068] As for substituent R² in a compound expressed with general formula (II), it is preferred that it is what

comprises C, H, and O, it is more preferred that it is a hydrocarbon group, and it is still more preferred that it is a methyl group.

[0069] From acquisition ease etc., it is preferred that it is 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane.

[0070] A thing [a thing] described above and which are independent, or mixes two or more sorts of things, and is used is possible for an ingredient in some numbers (beta).

As (a reaction of a SiH group, an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has reactivity in [at least two] one molecule, and an ingredient (beta)), next a (A) ingredient of this invention, A case where a compound which can obtain an organic compound and an ingredient (beta) which contain a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule by the ability to carry out a hydrosilylation reaction is used, A hydrosilylation reaction of an organic compound and an ingredient (beta) which contain a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule is explained.

[0071] When the hydrosilylation reaction of an organic compound and an ingredient (beta) which contain a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule is carried out, a mixture of two or more compounds containing the (A) ingredient of this invention may be obtained, but. Without separating the (A) ingredient from there, it can use with a mixture and a hardenability constituent of this invention can also be created.

[0072] A case where the hydrosilylation reaction of an organic compound and an ingredient (beta) which contain a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule is carried out, The mixing ratio of a SiH group, an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has reactivity in [at least two] one molecule, and an ingredient (beta), in a point that gelling under reaction can be controlled although not limited in particular, Total (X) of a carbon-carbon double bond which generally has the reactivity of a SiH group to mix and a SiH group in an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has reactivity in [at least two] one molecule, it is preferred that a ratio with a total (Y) of a SiH group in an ingredient (beta) to mix is X/Y > 2, and it is more preferred that it is X/Y > 3. From a point that compatibility with the (B) ingredient of the (A) ingredient becomes good easily, it is preferred that it is 10 > X/Y and it is more preferred that it is 5 > X/Y.

[0073] A suitable catalyst may be used when carrying out the hydrosilylation reaction of an organic compound and an ingredient (beta) which contain a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule. As a catalyst, the following can be used, for example, A thing which made carriers, such as a simple substance of platinum, alumina, silica, and carbon black, support solid platinum, A complex with chloroplatinic acid, chloroplatinic acid, alcohol, aldehyde, ketone, etc., Platinum-olefin complex (for example, it Pt(CH₂-CH₂-(PPh₃)₂ and Pt(CH₂=CH₂)₂C₂ Platinum-vinyl siloxane complex (for example, it Pt(ViMe₂-SiOSiMe₂ Vi)_n and Pt[(MeVSiO)₄]_m, a platinum-phosphine complex. (For example, Pt(PPh₃)₄, Pt(PBu₃)₄, a platinum-phosphite complex (for example, Pt[P(OPh)₃]₄ and [Pt(P(OBu)₃]₄ (among a formula, a methyl group and Bu express a butyl group, Vi expresses a vinyl group, Ph expresses a phenyl group as for Me, and n and m) An integer is shown. A platinum-hydrocarbon complex indicated in dicarbonyl dichloroplatinum, a curl SHUTETO (Karstedt) catalyst, U.S. Pat. No. 3159601 of Ashby (Ashby), and the No. 3159862 specification, And a platinum alcoholate catalyst indicated in a U.S. Pat. No. 3220972 specification of RAMORO (Lamoreaux) is mentioned. A platinum chloride-olefin complex indicated in a U.S. Pat. No. 3516946 specification of Modic (Modic) is also useful in this invention.

[0074] As an example of catalysts other than a platinum compound, RhCl(PPh)₃, RhCl₃, RhAl₂O₃, RuCl₃, IrCl₃, FeCl₃, AlCl₃, PdCl₂ and 2H₂O, NiCl₂, TiCl₄, etc. are mentioned.

[0075] In these, chloroplatinic acid, a platinum-olefin complex, a platinum-vinyl siloxane complex, etc. are preferred from a point of catalytic activity. These catalysts may be used alone and may be used together two or more sorts.

[0076] Although an addition in particular of a catalyst is not limited, in order to have sufficient hardenability and to hold down cost of a hardenability constituent comparatively low a minimum of a desirable addition, (beta) as opposed to 1 mol of SiH groups of an ingredient — 10⁻⁸ mol — are 10⁻⁶ mol more preferably

and a maximum of a desirable addition receives 1 mol of SiH groups of an ingredient (beta) — 10^{-1} mol — it is 10^{-2} mol more preferably.

[0077]It is possible to use a co-catalyst together for the above-mentioned catalyst, and as an example The Lynn system compounds, such as triphenyl phosphine, Amine system compounds, such as sulfur—systems compounds, such as sulfur of acetylene alcohol system compounds, such as 1, such as dimethyl maleate, 2-diester system compound, and a 2-hydroxy-2-methyl-1-butene, and a simple substance, and triethylamine, etc. are mentioned. a minimum [as opposed to / although an addition in particular of a co-catalyst is not limited / 1 mol of hydrosilylation catalysts] of a desirable addition — 10^{-2} mol — it is 10^{-1} mol more preferably — a maximum of a desirable addition — 10^{-2} mol — it is 10 mol more preferably.

[0078]Although various methods can be taken as the method of mixing of an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has a SiH group in a case of making it react, and reactivity in [at least two] one molecule, an ingredient (beta), and a catalyst. A method of mixing ***** (beta) for [what mixed a catalyst to an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule is preferred. Control of a reaction is difficult in case of a method of mixing a catalyst into an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule, and a mixture of an ingredient (beta). (beta) Since it has moisture and reactivity which an ingredient is mixing under existence (beta) of a catalyst when taking a method of mixing an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in what mixed a catalyst with an ingredient in [at least two] one molecule, it may deteriorate.

[0079]Although many things can be set up as reaction temperature, 30 °C of minimums of a desirable temperature requirement are 50 °C more preferably in this case, and 200 °C of maximums of a desirable temperature requirement are 150 °C more preferably. It is not practical if reaction time for making it fully react will become long if reaction temperature is low, and reaction temperature is high. Although a reaction may be performed at a fixed temperature, a multi stage story or per-continuum temperature may be changed if needed.

[0080]A pressure of reaction time and reaction time can also be set up variously if needed. [0081]A solvent may be used in the case of a hydrosilylation reaction. A solvent which can be used is not what is limited especially unless a hydrosilylation reaction is checked, if it illustrates concretely, hydrocarbon system solvents, such as benzene, toluene, hexane, and heptane, Halogen system solvents, such as ketone solvent [such as ether system solvents, such as tetrahydrofuran 1, 4-dioxane, 1,3-dioxolane and diethylether, acetone, and methyl ethyl ketone,], chloroform, methylene chloride, 1, and 2-dichloroethane, can be used conveniently. A solvent can also be used as two or more kinds of mixed solvents. As a solvent, toluene, a tetrahydrofuran, 1,3-dioxolane, and chloroform are preferred. The amount of solvents to be used can also be set up suitably.

[0082]In addition, various additive agents may be used for the purpose of controlling reactivity etc. [0083]After making an organic compound and an ingredient (beta) which contain a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule react, An organic compound or/ and (beta) an ingredient which contain a carbon-carbon double bond which has a solvent or/, and an unreacted SiH group and reactivity in [at least two] one molecule are also removable. Since the (A) ingredient obtained does not have volatile matter content, it is hard to produce a problem of a void by volatilization of volatile matter content, and a crack by removing such volatile matter content in hardening with the (B) ingredient. As a method of removing, processing by activated carbon, aluminum silicate, silica gel, etc. besides for example, decompression devolatilization, etc. are mentioned. When carrying out decompression devolatilization, processing at low temperature is preferred. A maximum of a desirable temperature in this case is 100 °C, and is 60 °C more preferably. If it processes at an elevated temperature, it will be easy to be accompanied by deterioration of thickening etc.

[0084]As an example of the (A) ingredient which is an organic compound and a reactant of an ingredient (beta) which contain a carbon-carbon double bond which has above SiH groups and reactivity in [at least two] one molecule, A reactant of bisphenol A diaryl ether and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, A reactant of a vinylcyclohexene and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, A reactant of divinylbenzene and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, A reactant of a dicyclopentadiene and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, A reactant of triallyl isocyanurate, a

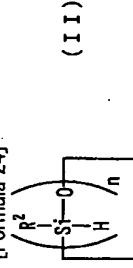
reactant of 1,3,5,7-tetramethyl cyclotetrasiloxane and diaryl monoglycidyl isocyanurate, and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, etc. can be mentioned. A compound which has a SiH group which are (B) Ingredient), next the (B) ingredient is explained.

[0085]The (B) ingredient of this invention is a compound which contains at least two SiH groups in one molecule.

[0086](B) It is a compound which there will be no restriction especially if it is a compound which contains at least two SiH groups in one molecule about an ingredient, for example, is indicated to international publication WO96/15194, and what has at least two SiH groups in one molecule can be used.

[0087]From a field of availability, it is following general formula (II) further among these from a viewpoint that a chain and/or annular organopolysiloxane which have at least two SiH groups are preferred in one molecule, and compatibility with the (A) ingredient is good for it.

[0088]
[Formula 24]



(among a formula, R² expresses the organic group of the carbon numbers 1–6, and n expresses the number of 3–10.) — the annular organopolysiloxane which is expressed and which has at least two SiH groups in one molecule is preferred.

[0089]As for substituent R² in the compound expressed with general formula (II), it is preferred that it is what comprises C, H, and O, it is more preferred that it is a hydrocarbon group, and it is still more preferred that it is a methyl group.

[0090]As a compound expressed with general formula (II), it is preferred from a viewpoint of acquisition ease that it is 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane.

[0091](B) Although restrictions in particular do not have a molecular weight of an ingredient and arbitrary things can use it conveniently, from a viewpoint of being easier to reveal mobility, the thing of low molecular weight is used preferably. Specifically the thing of 50–100,000 has a preferred molecular weight, the thing of 50–1,000 is more preferred, and the thing of 50–700 is still more preferred.

[0092](B) Independent, two or more sorts of things are mixed, and an ingredient can be used. [0093](A) From a viewpoint of having an ingredient and good compatibility, and a viewpoint of being hard to produce a problem of outgas from encapsulant that the volatility of the (B) ingredient can become low. (B) An organic compound (alpha) which contains a carbon-carbon double bond in which an ingredient has a SiH group and reactivity in [one or more] one molecule, it is preferred that it is a compound which can obtain a chain and/or annular polyorganosiloxane (beta) which has at least two SiH groups by the ability to carry out a hydrosilylation reaction in one molecule.

(alpha) The ingredient (alpha) can also use here the same thing (alpha 1) as a SiH group and an organic compound which contains a carbon-carbon double bond which has reactivity in [at least two] one molecule which are the above-mentioned (A) ingredients (ingredient). (alpha 1) Crosslinking density of a hardened material which will be obtained if an ingredient is used becomes high, and dynamics intensity serves as reliable high encapsulant easily.

[0094]In addition, an organic compound (alpha 2) which contains a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [one] one molecule can also be used. (alpha 2) A hardened material which will be obtained if an ingredient is used serves as low elasticity easily, and serves as reliable encapsulant easily by low stress.

(alpha 2) Especially if it is an organic compound which contains as an ingredient a carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [one] one molecule, will not be limited, but (alpha 2). (ingredient) (B) In a point that the (A) ingredient and compatibility become good in an ingredient, it is preferred that it is what does not include siloxane units (Si–O–Si) like polysiloxane organicity block copolymer or a polysiloxane organicity graft copolymer as a compound, and contains only C, H, N, O, S, and halogen as a composing element.

[0095](alpha 2) A SiH group of an ingredient and a connecting position in particular of a carbon-carbon double bond which has reactivity are not limited, but may exist anywhere in intramolecular.

[0096](alpha 2) A compound of an ingredient can be classified into a compound and a monomer system compound of a polymer system.

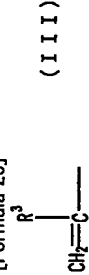
[0097]As a polymer system compound, for example, a polysiloxane system, a polyether system, A compound of a polyester system, a polyarylate system, a polycarbonate system, a saturated hydrocarbon system, an unsaturated hydrocarbon system, a polyacrylic ester system, a polyamide system, a phenolformaldehyde system (phenol resin system), and a polyimide system can be used.

[0098]As a monomer system compound, a compound of aliphatic hydrocarbon system, heterocyclic systems, such as aromatic hydrocarbon system, straight chain systems, such as a phenol system, a bisphenol system, benzene, and naphthalene, and an alicyclic system, compounds of a silicon system, these mixtures, etc. are mentioned.

[0099](alpha 2) Although not limited especially as a carbon-carbon double bond which has a SiH group of an ingredient, and reactivity, it is following general formula (III).

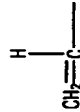
[0100]

[Formula 25]



(R³ in a formula expresses a hydrogen atom or a methyl group.) — the basis shown is preferred from a reactant point. From the ease of acquisition of a raw material, [0101]

[Formula 26]

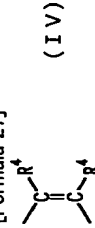


Especially the basis shown is preferred.

[0102](alpha 2) As a carbon-carbon double bond which has a SiH group of an ingredient, and reactivity, it is following general formula (IV).

[0103]

[Formula 27]



(R⁴ in a formula expresses a hydrogen atom or a methyl group.) — an alicyclic basis shown is preferred from a point that the heat resistance of a hardened material is high. From an ease of acquisition of a raw material, [0104]

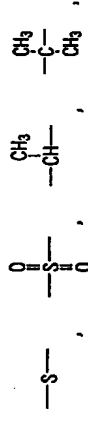
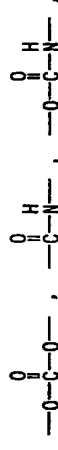
[Formula 28]



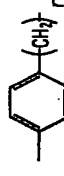
Especially the alicyclic basis shown is preferred.

[0105]The carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity may be coupled directly with the skeletal part of an ingredient (alpha 2), and the covalent bond may be carried out via the substituent more than divalent. Especially if it is a substituent of the carbon numbers 0-10 as a substituent more than divalent, it will not be limited, but that in which the (B) ingredient contains only C, H, N, O, S, and halogen as a composing element in the point that the (A) ingredient and compatibility become good easily is preferred. As the example of these substituents, [0106]

[Formula 29]



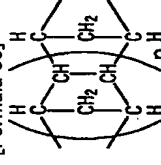
(nは1～10の数を表す。)



(nは0～4の数を表す。)

[0107]

[Formula 30]

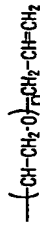


(nは0～4の数を表す。)

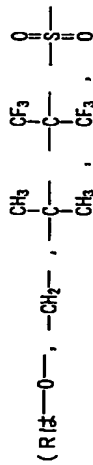
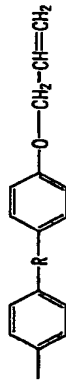
*****. Two or more of the substituents more than divalent [these] are connected by a covalent bond, and they may constitute the substituent more than divalent [one].

[0108]As an example of the basis which carries out a covalent bond to the above skeletal parts, A vinyl group, an allyl group, a metallyl group, an acrylic group, an methacrylic group, a 2-hydroxy-3-(allyloxy) propyl group, 2-allyl phenyl group, 3-allyl phenyl group, 4-allyl phenyl group, A 2-(allyloxy) phenyl group, 3-(allyloxy) phenyl group, 4-(allyloxy) phenyl group, 2-(allyloxy) ethyl group, 2, and 2-bis(aryloxymethyl)butyl group, the 3-allyloxy 2, a 2-bis(aryloxymethyl)propyl group, [0109]

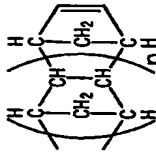
[Formula 31]



(nは5 ≤ n ≤ 2を満足する数を表す。),



から選ばれた2箇の基を表す。),



(nは0~4の数を表す。)

[0110](alpha 2) As a concrete example of an ingredient, a propene, 1-butene, 1-pentene, 1-hexene, 1-heptene, 1-octene, 1-nonene, 1-decene, 1-dodecen, 1-undecene, Lini Allen by an Idemitsu petrochemical company, 4,4-dimethyl-1-pentene, A 2-methyl-1-hexene, a 2,3,3-trimethyl 1-butene, Chain aliphatic hydrocarbon system compounds, such as 2, 4, and 4-trimethyl 1-pentene. A cyclohexene, a methylcyclohexene, methylenecyclohexane, NORBORNEN, ethylenecyclohexane, vinylcyclohexane, Annular aliphatic hydrocarbon system compounds, such as camphene, Caren, alpha pinene, and beta pinene. Styrene, alpha methylstyrene, indene, phenylacetylene, 4-ethynyltoluene, Aromatic hydrocarbon system compounds, such as allylbenzene and a 4-phenyl-1-butene, Aliphatic series system compounds, such as allyl ether [such as alkyl allyl ether and allylphenyl ether], glycerin monoallyl ether, ethylene glycol monoallyl ether, and 4-vinyl-1,3-dioxolane 2-one, 1,2-dimethoxy- 4-allylbenzene, Aromatic system compounds, such as o-allylphenol, monoallyl dibenzyl isocyanurate, Silicon compounds, such as substitution isocyanurate, such as monoallyl diglycidyl isocyanurate, vinyl trimethylsilane, vinyltrimetoxysilane, and a vinyltriphenylsilane, etc. are mentioned. Polyether system resin, such as piece end arylation polyethylene oxide and piece end arylation polypropylene oxide, Polymer or oligomer etc. which has a vinyl group can be mentioned to piece ends, such as acrylic resin, such as hydrocarbon system resin, such as piece end arylation polyisobutylene, piece end arylation poly butyl acrylate, and piece end arylation polymethylmethacrylate.

[0111]A line or a letter of branching may be sufficient as structure, restrictions in particular do not have a molecular weight and it can use various things. In a point that viscosity of a mixture becomes low and a moldability becomes good easily although molecular weight distribution in particular does not have restriction, either, it is preferred that molecular weight distribution is three or less, it is more preferred that it is two or less, and it is still more preferred that it is 1.5 or less.

[0112](alpha 2) When glass-transition temperature of an ingredient exists, there is no limitation in particular also about this, and various things are used, but. In a point that a hardened material obtained becomes tough easily, as for glass point transfer temperature, it is preferred that it is 100 ** or less, it is more preferred that it is 50 ** or less, and it is still more preferred that it is 0 ** or less. Poly butyl acrylate resin etc. are mentioned as an example of desirable resin. Conversely, in a point that the heat resistance of a hardened material obtained becomes high, as for glass-transition temperature, it is preferred that it is not less than 100 **, it is more preferred that it is not less than 120 **, it is still more preferred that it is not

less than 150 **, and it is most preferred that it is not less than 170 **. It can ask for glass-transition temperature as a temperature tandelta indicates the maximum to be in dynamic viscoelasticity measurement.

[0113](alpha 2) In a point that the heat resistance of a hardened material obtained becomes high as an ingredient, it is preferred that it is a hydrocarbon compound. In this case, a minimum of a desirable carbon number is 7 and a maximum of a desirable carbon number is 10.

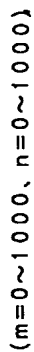
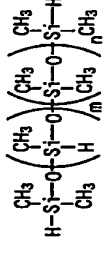
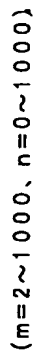
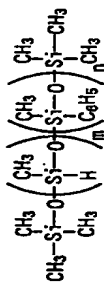
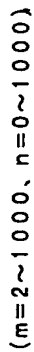
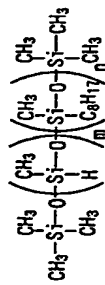
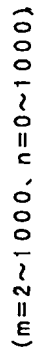
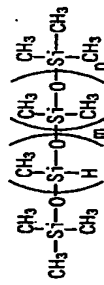
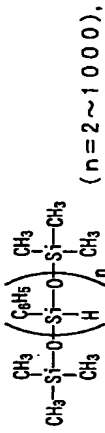
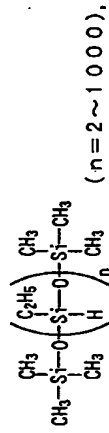
[0114](alpha 2) As an ingredient, it may have other reactant groups. As a reactant group in this case, an epoxy group, an amino group, a radical polymerization nature unsaturation group, a carboxyl group, an isocyanate group, hydroxyl, alkoxy silyl groups, etc. are mentioned. When it has these functional groups, intensity of a hardened material obtained by the adhesive property of a hardenability constituent obtained becoming high easily becomes high easily. From a point that an adhesive property can become higher, an epoxy group is preferred among these functional groups. In a point that the heat resistance of a hardened material obtained becomes high easily, it is preferred to average a reactant group and to have in [one or more] one molecule. Specifically, monoallyl diglycidyl isocyanurate, allyl glycidyl ether, allyloxy ethyl methacrylate, allyloxy ethyl acrylate, vinyltrimetoxysilane, etc. are mentioned.

[0115]A single thing may be used as above (alpha 2) ingredients, and it may use combining two or more things.

(beta) An ingredient is a chain and/or annular polyorganosiloxane which has at least two SiH groups in one molecule (beta). (ingredient)

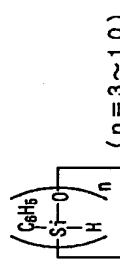
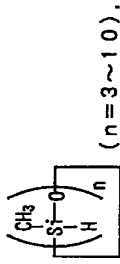
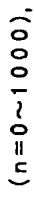
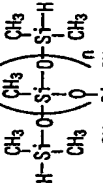
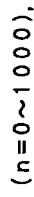
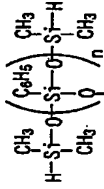
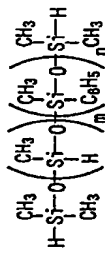
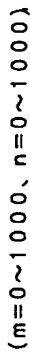
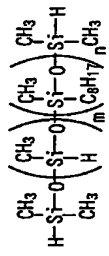
[0116]concrete --- for example [0117]

[Formula 32]



[0118]

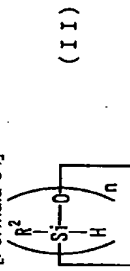
[Formula 33]



[0119] From a viewpoint that compatibility with an ingredient (alpha) becomes good easily here to following general formula (II)

[0120]

[Formula 34]



(among a formula, R² expresses the organic group of the carbon numbers 1-6, and n expresses the number of 3-10.) — the annular polyorganosiloxane which is expressed and which has at least three SiH groups in one molecule is preferred.

[0121] As for substituent R² in a compound expressed with general formula (II), it is preferred that it is what comprises C, H, and O, it is more preferred that it is a hydrocarbon group, and it is still more preferred that

it is a methyl group.

[0122]From acquisition ease etc., it is preferred that it is 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane.
[0123]A thing [a thing] described above and which are independent, or mixes two or more sorts of things, and is used is possible for an ingredient in some numbers (beta).

A hydrosilylation reaction of an ingredient (alpha) and an ingredient (beta) in a case of using a compound which can obtain an ingredient (alpha) and an ingredient (beta) by the ability to carry out a hydrosilylation reaction as ((alpha) a reaction of an ingredient and an ingredient (beta)), next a (B) ingredient of this invention is explained.

[0124]When the hydrosilylation reaction of an ingredient (alpha) and the ingredient (beta) is carried out, a mixture of two or more compounds containing the (B) ingredient of this invention may be obtained, but without separating the (B) ingredient from there, it can use with a mixture and a hardenability constituent of this invention can also be created.

[0125](alpha) The mixing ratio of an ingredient (alpha) in a case of carrying out the hydrosilylation reaction of an ingredient and the ingredient (beta), and an ingredient (beta). Although not limited in particular, when intensity of a hardened material by hydrosilylation with the (B) ingredient and the (A) ingredient which are obtained is considered, since a direction with many SiH groups of the (B) ingredient is preferred, it is preferred that a ratio with a total (Y) of a SiH group in an ingredient (beta) mixed with total (X) of a carbon-carbon double bond which has reactivity with a SiH group in an ingredient (alpha) generally mixed is $Y/X \geq 2$, and it is more preferred that it is $Y/X \geq 3$. From a point that compatibility with the (A) ingredient of the (B) ingredient becomes good easily, it is preferred that it is $10 \geq Y/X$ and it is more preferred that it is $5 \geq Y/X$.

[0126](alpha) A suitable catalyst may be used when carrying out the hydrosilylation reaction of an ingredient and the ingredient (beta). As a catalyst, the following can be used, for example. A thing which made carriers, such as a simple substance of platinum, alumina, silica, and carbon black, support solid platinum. A complex with chloroplatinic acid, chloroplatinic acid, alcohol, aldehyde, ketone, etc., Platinum-olefin complex (for example, it $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}-\text{CH}_2)_2(\text{PPh}_3)_2$ and $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}_2)_2\text{Cl}_2$, Platinum-vinyl siloxane complex (for example, it $\text{Pt}(\text{ViMe}-2-\text{SiOSiMe}_2)_2$, $\text{Vi}-\text{I}$, and $\text{Pt}[(\text{MeViSiO})_4]_m$, a platinum-phosphine complex. (For example, $\text{Pt}(\text{PPh}_3)_4$, $\text{Pt}(\text{PBu}_3)_4$, a platinum-phosphite complex (for example, $\text{Pt}[\text{P}(\text{OPh})_3]_4$ and $\text{Pt}[\text{P}(\text{OBu})_3]_4$ (among a formula, a methyl group and Bu express a butyl group. Vi expresses a vinyl group. Ph expresses a phenyl group as for Me, and n and m) An integer is shown. A platinum-hydrocarbon complex indicated in dicarbonyl dichloroplatinum, a curl SHUTETO (Karstedt) catalyst, U.S. Pat. No. 3159601 of Ashby (Ashby), and the No. 3159662 specification. And a platinum alcoholate catalyst indicated in a U.S. Pat. No. 3220972 specification of RAMORO (Lamoreaux) is mentioned. A platinum chloride-olefin complex indicated in a U.S. Pat. No. 3516946 specification of Modic (Modic) is also useful in this invention.

[0127]As an example of catalysts other than a platinum compound, $\text{RhCl}(\text{PPh})_3$, RhCl_3 , RhAl_2O_3 , RuCl_3 , IrCl_3 , FeCl_3 , AlCl_3 , PdCl_2 and $2\text{H}_2\text{O}$, NiCl_2 , TiCl_4 , etc. are mentioned.

[0128]In these, chloroplatinic acid, a platinum-olefin complex, a platinum-vinyl siloxane complex, etc. are preferred from a point of catalytic activity. These catalysts may be used alone and may be used together two or more sorts.

[0129]Although an addition in particular of a catalyst is not limited, in order to have sufficient hardenability and to hold down cost of a hardenability constituent comparatively low a minimum of a desirable addition, (beta) as opposed to 1 mol of SiH groups of an ingredient — 10^{-8} mol — are 10^{-6} mol more preferably and a maximum of a desirable addition receives 1 mol of SiH groups of an ingredient (beta) — 10^{-1} mol — it is 10^{-2} mol more preferably. Here [here] It is possible again to use a co-catalyst together for the above-mentioned catalyst. Amine system compounds, such as sulfur-systems compounds, such as sulfur of acetylene alcohol system compounds, such as 1, such as the Lynn system compounds, such as triphenyl phosphine, and dimethyl maleate, 2-diester system compound, and a 2-hydroxy-2-methyl-1-butene, and a simple substance, and triethylamine, etc. are mentioned as an example, a minimum [as opposed to / although an addition in particular of a co-catalyst is not limited / 1 mol of hydrosilylation catalysts] of a desirable addition — 10^{-2} mol — it is 10^{-1} mol more preferably — a maximum of a desirable addition —

10^2 mol — it is 10 mol more preferably.

[0130]Although various methods can be taken as the method of mixing of an ingredient (alpha) in a case of making it react, an ingredient (beta), and a catalyst, a method of mixing ***** (beta) for what mixed a catalyst for an ingredient (alpha) is preferred. (alpha) Control of a reaction is difficult in case of a method of mixing a catalyst into a mixture of an ingredient and an ingredient (beta). (beta) Since it has moisture and reactivity which an ingredient is mixing under existence (beta) of a catalyst when taking a method of mixing an ingredient (alpha) to what mixed a catalyst with an ingredient, it may deteriorate.

[0131]Although many things can be set up as reaction temperature, 30 °C of minimums of a desirable temperature requirement are 50 °C more preferably in this case, and 200 °C of maximums of a desirable temperature requirement are 150 °C more preferably. It is not practical if reaction time for making it fully react will become long if reaction temperature is low, and reaction temperature is high. Although a reaction may be performed at a fixed temperature, a multi stage story or per-continuum temperature may be changed if needed.

[0132]A pressure of reaction time and reaction time can also be set up variously if needed.

[0133]A solvent may be used in the case of a hydrosilylation reaction. A solvent which can be used is not what is limited especially unless a hydrosilylation reaction is checked. If it illustrates concretely, hydrocarbon system solvents, such as benzene, toluene, hexane, and heptane, Halogen system solvents, such as ketone solvent [such as ether system solvents, such as tetrahydrofuran 1, 4-dioxane, 1,3-dioxolane and diethylether, acetone, and methyl ethyl ketone,], chloroform, methylene chloride, 1, and 2-dichloroethane, can be used conveniently. A solvent can also be used as two or more kinds of mixed solvents. As a solvent, toluene, a tetrahydrofuran, 1,3-dioxolane, and chloroform are preferred. The amount of solvents to be used can also be set up suitably.

[0134]In addition, various additive agents may be used for the purpose of controlling reactivity etc.

[0135](alpha) After making an ingredient and an ingredient (beta) react, a solvent or/and an unreacted (alpha) ingredient or/ and (beta) an ingredient are also removable. Since the (B) ingredient obtained does not have volatile matter content, it is hard to produce a problem of a void by volatilization of volatile matter content, and a crack by removing such volatile matter content in hardening with the (A) ingredient. As a method of removing, processing by activated carbon, aluminum silicate, silica gel, etc. besides for example, decompression devolatilization, etc. are mentioned. When carrying out decompression devolatilization, processing at low temperature is preferred. A maximum of a desirable temperature in this case is 100 °C, and is 60 °C more preferably. If it processes at an elevated temperature, it will be easy to be accompanied by deterioration of thickening etc.

[0136]As an example of the (B) ingredient which is a reactant of above ingredients (alpha) and ingredients (beta). A reactant of bisphenol A diaryl ether and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane. A reactant of a vinylcyclohexene and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane. A reactant of divinylbenzene and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane. A reactant of a dicyclopentadiene and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane. A reactant of triallyl isocyanurate and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane. A reactant of diethyl glycidyl ether and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane. A reactant of allyl glycidyl ether and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane. A reactant of alpha methylstyrene, a reactant of 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane and monoallyl diglycidyl isocyanurate, and 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, etc. can be mentioned.

(Mixing of the (A) ingredient and the (B) ingredient) About combination of the (A) ingredient and the (B) ingredient, various combination of things quoted as an example of a thing quoted as an example of the (A) ingredient, and those various mixtures / (B) ingredient and those various mixture ** can be mentioned. [0137](A) In a ratio [as opposed to / the mixing ratio of an ingredient and the (B) ingredient is not limited especially unless required intensity is lost, but / number (X) of a carbon-carbon double bond in the (A) ingredient of the number of SiH groups in the (B) ingredient (Y)], a minimum of a desirable range — $Y/X \geq 0.3$ — more — desirable — $Y/X \geq 0.5$ — it is $Y/X \geq 0.7$ still more preferably — a maximum of a desirable range — $3 \geq Y/X$ — more — desirable — $2 \geq Y/X$ — it is $1.5 \geq Y/X$ still more preferably. When it shifts, sufficient intensity is not obtained or it becomes easy to carry out heat deterioration from a desirable range.

(C) ingredient) A hydrosilylation catalyst which is next the (C) ingredient is explained.

[0138]As a hydrosilylation catalyst, especially if there is catalytic activity of a hydrosilylation reaction, will

not be limited, but. For example, a thing which made carriers, such as a simple substance of platinum, alumina, silica, and carbon black, support solid platinum. A complex with chloroplatinic acid, chloroplatinic acid, alcohol, aldehyde, ketone, etc., Platinum-olefin complex (for example, it $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}-\text{CH}_2)_2(\text{PPh}_3)_2$ and $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CH}_2)_2\text{Cl}_2$, Platinum-vinyl siloxane complex (for example, it $\text{Pt}(\text{ViMe}-\text{SiOSiMe}_2-\text{Vi})_2$ and $\text{Pt}(\text{MeViSiO})_4$ m, a platinum-phosphine complex. (For example, $\text{Pt}(\text{PPh}_3)_4$, $\text{Pt}(\text{PBu}_3)_4$, a platinum-phosphite complex (for example, $\text{Pt}[\text{P}(\text{OPh})_3]_4$ and $[\text{Pt}(\text{P}(\text{OBu})_3)_4$ (among a formula, a methyl group and Bu express a butyl group, Vi expresses a vinyl group, Ph expresses a phenyl group as for Me, and n and m show an integer), dicarbonyl dichloroplatinum, and a curl SHUTETO (Karstedt) catalyst. A platinum alcoholate catalyst indicated in a platinum-hydrocarbon complex indicated in U.S. Pat. No. 3159601 of Ashby (Ashby) and the No. 3159662 specification and a U.S. Pat. No. 3220972 specification of RAMORO (Lamoreaux) is mentioned. A platinum chloride-olefin complex indicated in a U.S. Pat. No. 3516946 specification of Modic (Modic) is also useful in this invention.

[0139]As an example of catalysts other than a platinum compound, $\text{RhCl}(\text{PPh})_3$, RhCl_3 , RhAl_2O_3 , RuCl_3 , IrCl_3 , FeCl_3 , AlCl_3 , PdCl_2 and $2\text{H}_2\text{O}$, NiCl_2 , TiCl_4 , etc. are mentioned.

[0140]In these, chloroplatinic acid, a platinum-olefin complex, a platinum-vinyl siloxane complex, etc. are preferred from a point of catalytic activity. These catalysts may be used alone and may be used together two or more sorts.

[0141]Although an addition in particular of a catalyst is not limited, in order to have sufficient hardenability and to hold down cost of a hardenability constituent comparatively low a minimum of a desirable addition, (B) as opposed to 1 mol of SiH groups of an ingredient 10^{-8} mol — are 10^{-6} mol more preferably and a maximum of a desirable addition receives 1 mol of SiH groups of an ingredient (beta) 10^{-1} mol — it is 10^{-2} mol more preferably.

[0142]It is possible to use a co-catalyst together for the above-mentioned catalyst, and as an example The Lynn system compounds, such as triphenyl phosphine, Amine system compounds, such as sulfur-systems compounds, such as sulfur of acetylene alcohol system compounds, such as 1, such as dimethyl maleate, 2-diester system compound, and a 2-hydroxy-2-methyl-1-butene, and a simple substance, and triethylamine, etc. are mentioned. a minimum [as opposed to / although an addition in particular of a co-catalyst is not limited / 1 mol of hydrosilylation catalysts] of a desirable addition 10^{-2} mol — it is 10^{-1} mol more preferably — a maximum of a desirable addition 10^2 mol — it is 10 mol more preferably. An adhesion grant agent which are ((D) Ingredient), next the (D) ingredient of this invention is explained. [0143]Everything but adhesives generally used as an adhesion grant agent, for example, various coupling agents, An epoxy compound, phenol resin, coumarone-indene resin, rosin ester resin, terpene phenol resin, a alpha-methylstyrene vinyltoluene copolymer, polyethylmethacrylate, aromatic polyisocyanate, etc. can be mentioned.

[0144]A silane coupling agent is mentioned as a coupling agent. It will not be limited especially if it is a compound which has respectively an organic group, an existing reactant functional group, and at least one silicon group of hydrolysis nature in a molecule as a silane coupling agent. As an organic group and an existing reactant basis, an epoxy group from a point of handling nature, an methacrylic group. At least one functional group chosen from an acrylic group, an isocyanate group, an isocyanurate group, a vinyl group, and a carbamate group is preferred, and an epoxy group, an methacrylic group, and especially an acrylic group are preferred from hardenability and an adhesive point. As a silicon group of hydrolysis nature, a point of handling nature to alkoxy silyl groups is preferred, and especially a methoxy silyl group and ethoxy silyl group is preferred from a reactant point.

[0145]As a desirable silane coupling agent, 3-glycidoxypolytrimethoxysilane, 3-glycidoxypolytriethoxysilane, 2-(3, 4-epoxycyclohexyl) ethyltriethoxysilane, The alkoxy silane which has epoxy functional groups, such as 2-(3,4-epoxycyclohexyl) ethyltriethoxysilane : 3-methacryloxy propyl trimethoxysilane, 3-methacryloxypropyl triethoxysilane, 3-acryloxypropyltrimethoxysilane, 3-acryloxypropyltriethoxysilane, meta-KURIROKISHI methyl trimethoxysilane, The alkoxy silane which has an methacrylic group or acrylic groups, such as meta-KURIROKISHI methyl triethoxysilane, acryloxy methyl trimethoxysilane, and acryloxy methyl triethoxysilane, can be illustrated.

[0146]Although many things can be set up as an addition of a silane coupling agent, minimums of a

desirable addition to [ingredient + (B) (A) Ingredient] 100 weight section are 0.5 weight sections more preferably 0.1 weight sections, and maximums of a desirable addition are 25 weight sections more preferably 50 weight sections. If there are few additions, the adhesive improvement effect will not appear, but if there are many additions, it may have an adverse effect on hardened material physical properties. [0147]As an epoxy compound, for example A novolac phenol type epoxy resin, A biphenyl type epoxy resin, dicyclopentadiene type epoxy resin, Bisphenol F diglycidyl ether, bisphenol A diglycidyl ether, 2,2-bis(4-glycidyloxy cyclohexyl)propane, 3,4-epoxycyclohexylmethyl 3,4-epoxy cyclohexane carbo KISHIRETO, Vinylcyclohexene dioxide, 2-(3,4-epoxycyclohexyl)-5,5-spiro(3,4-epoxy cyclohexane)-1,3-dioxane, A bis (3,4-epoxycyclohexyl)horse mackerel peat, screw 1,2-cyclopropanedicarboxylate glycidyl ester, triglycidyl isocyanurate, monoallyl diglycidyl isocyanurate, diaryl monoglycidyl isocyanurate, etc. can be mentioned. [0148]Although many things can be set up as an addition of an epoxy compound, minimums of a desirable addition to [ingredient + (B) (A) Ingredient] 100 weight section are three weight sections more preferably 1 weight section, and maximums of a desirable addition are 25 weight sections more preferably 50 weight sections. If there are few additions, the adhesive improvement effect will not appear, but if there are many additions, it may have an adverse effect on hardened material physical properties.

[0149]These coupling agents, a silane coupling agent, an epoxy compound, etc. may be used alone, and may be used together two or more sorts.

[0150]A compound which contains an epoxy group in intramolecular in a point that the adhesive grant effect is high among these adhesion grant agents is preferred. The 3-glycidoxypolytrimethoxysilane above-mentioned as an example of a compound containing an epoxy group, 3-glycidoxypolytriethoxysilane, 2-(3, 4-epoxycyclohexyl) ethyltriethoxysilane, The alkoxy silane which has epoxy functional groups, such as 2-(3,4-epoxycyclohexyl) ethyltriethoxysilane, A novolac phenol type epoxy resin, a biphenyl type epoxy resin, Dicyclopentadiene type epoxy resin, bisphenol F diglycidyl ether, Bisphenol A diglycidyl ether, 2,2-bis(4-glycidyloxy cyclohexyl)propane, 3,4-epoxycyclohexylmethyl 3,4-epoxy cyclohexane carbo KISHIRETO, Vinylcyclohexene dioxide, 2-(3,4-epoxycyclohexyl)-5,5-spiro(3,4-epoxy cyclohexane)-1,3-dioxane, A bis(3,4-epoxycyclohexyl)horse mackerel peat, screw 1,2-cyclopropanedicarboxylate glycidyl ester, triglycidyl isocyanurate, monoallyl diglycidyl isocyanurate, Epoxy compounds, such as diaryl monoglycidyl isocyanurate, etc. are mentioned.

((E) ingredient) A silanol condensation catalyst which is next the (E) ingredient is explained. [0151]In order to heighten an effect of a coupling agent or an epoxy compound in this invention, a silanol condensation catalyst can be used further and adhesive improvement and/or stabilization is possible.

Although not limited especially as such a silanol condensation catalyst, a boron system compound or/and an aluminum system compound or/, and a titanium system compound are preferred, as the boron system compound used as a silanol condensation catalyst — trimethoxy borane and TORIE — an ibis — a crimp borane, can be illustrated. As an aluminum system compound used as a silanol condensation catalyst, Aluminum TORISO propoxide, sec-butoxyaluminum JISOFUROPOKISHIDO, Aluminum alkoxides, such as aluminum NIUMUTORI sec-butoxide : Ethylacetate aluminum diisopropoxide, aluminum tris (ethylacetate), The aluminum chelate M (the Kawaken Fine Chemicals make, alkyl acetate aluminum diisopropoxide). Aluminum chelate, such as aluminum tris (acetylacetonate) and an aluminum monoacetyl acetate screw (ethylacetate), can be illustrated, and aluminum chelate is more preferred from a point of handling nature. As a titanium system compound used as a silanol condensation catalyst, Titanium chelate, such as tetraalkoxy titanium-titanium tetra acetylacetonate, such as tetraisopropoxy titanium and tetrabutoxytitanium,; A general titanate coupling agent which has residue, such as oxyacetic acid and ethylene glycol, can be illustrated.

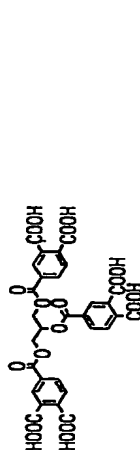
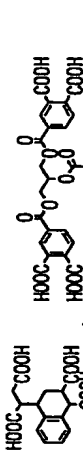
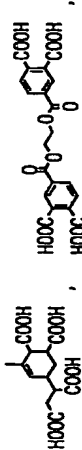
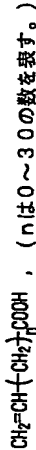
[0152]Although various the amount of [in case used of using a silanol condensation catalyst] can be set up, A minimum of a desirable addition to a coupling agent or/, and epoxy compound epoxy compound 100 weight section is one weight section more preferably 0.1 weight sections, and maximums of a desirable addition are 30 weight sections more preferably 50 weight sections. If there are few additions, the adhesive improvement effect will not appear, but if there are many additions, it may have an adverse effect on hardened material physical properties.

[0153]These silanol condensation catalysts may be used alone and may be used together two or more sorts.

((F) ingredient) The carboxylic acid or/, and the acid anhydrides which are next the (F) ingredients are

explained.

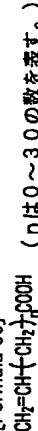
[0154]In order to heighten an effect of a compound which contains an epoxy group in this invention, carboxylic acid or/, and acid anhydrides can be used, and adhesive improvement and/, or stabilization is possible. Although not limited especially as such carboxylic acid and acid anhydrides, [0155]



2-ethylhexanoic acid, cyclohexane carboxylic acid, cyclohexanedicarboxylic acid, methylcyclohexane dicarboxylic acid, tetrahydrophthalic acid, methyl tetrahydrophthalic acid, methyl himic acid, norbornene dicarboxylic acid, hydrogenation methyl NAJIKKU acid, Maleic acid, acetylene dicarboxylic acid, lactic acid, malic acid, citrate, tartaric acid, benzoic acid, hydroxybenzoic acid, cinnamic acid, phthalic acid, trimellitic acid, pyromellitic acid, naphthalene carboxylic acid, naphthalene dicarboxylic acid and independent [those], or a compound acid anhydride is mentioned.

[0156]A thing containing a carbon-carbon double bond which has hydrosilylation reactivity among these carboxylic acid or/, and acid anhydrides, and has a SiH group and reactivity in a point of being hard to spoil the physical properties of a hardened material in which it oozes from a hardened material and the possibility of ** is acquired few is preferred. as desirable carboxylic acid or/, and acid anhydrides — for example [0157]

[Formula 36]



Tetrahydrophthalic acid, methyl tetrahydrophthalic acid and independent [those], or a compound acid anhydride is mentioned.

[0158]Although various the amount of [in case used of using carboxylic acid or/, and acid anhydrides] can be set up. A minimum of a desirable addition to a coupling agent or/, and epoxy compound epoxy compound 100 weight section is one weight section more preferably 0.1 weight sections, and maximums of a desirable addition are ten weight sections more preferably 50 weight sections. If there are few additions, the adhesive improvement effect will not appear, but if there are many additions, it may have an adverse effect on hardened material physical properties.

[0159]These carboxylic acid or/, and acid anhydrides may be used alone, and they may be used together two or more sorts.

(Mixing) Although various methods can be taken as the method of mixing of the (A) ingredient, the (B) ingredient, the (C) ingredient, and the (D) ingredient, In a point that the storage stability of an intermediate material of a sealing agent becomes good easily, what mixed the (C) ingredient and the (D) ingredient for the (A) ingredient, and a method of mixing the (B) ingredient are preferred. (B) When taking a method of mixing the (A) ingredient to what mixed the (C) ingredient or/, and the (D) ingredient for an ingredient, (C) Since the (B) ingredient has that of moisture in environment or/, and the (D) ingredient, and reactivity under ingredient existence or/and nonexistence, it may deteriorate in the storage middle class.

(Additive agent)

(Concrete retarder) A concrete retarder can be used in order to adjust the reactivity of a hydrosilylation reaction in the purpose of improving the preservation stability of **, or a manufacturing process to encapsulant of this invention. As a concrete retarder, a compound, an organophosphorus compound, an organic sulfur compound, a nitrogen containing compound, a tin series compound, organic peroxide, etc. containing aliphatic unsaturated bonds are mentioned, and these may be used together. As a compound containing aliphatic unsaturated bonds, propargyl alcohol, ene-yne compounds, and ester maleate are illustrated. As an organophosphorus compound, Tori ORGANO phosphoretted hydrogen, JIORUGANO phosphoretted hydrogen, ORGANO Foss John, and trio luanot phosphite are illustrated. As an organic sulfur compound, the ORGANO mercaptans, JIORUGANO sulfides, hydrogen sulfide, benzothiazole, a benzothiazole disulfide, etc. are illustrated. As a nitrogen containing compound, ammonia, the 1-3rd class alkylamine, arylamines, urea, hydrazine, etc. are illustrated. As a tin series compound, first tin of halogenation 2 hydrate, the first tin of carboxylic acid, etc. are illustrated. As organic peroxide, di-t-butylperoxide, dicumyl peroxide, benzoyl peroxide, perbenzoic acid t-butyl, etc. are illustrated. [0160]Delay activity is good among these concrete retarders, and a benzothiazole, thiazole, dimethylmalate, and 3-hydroxy-3-methyl-1-butene is preferred from a viewpoint that raw material availability is good. [0161]A minimum of a desirable addition to 1 mol of hydrosilylation catalysts used although various additions of a concrete retarder can be set up — 10^{-1} mol — it is 1 mol more preferably — a maximum of a desirable addition — 10^3 mol — it is 50 mol more preferably.

[0162]These concrete retarders may be used alone and may be used together two or more sorts.

(Adhesive improving agent) In order to heighten the adhesive grant effect further in this invention, a source compound of a silanol can be used further and adhesive improvement and/, or stabilization is possible again. As such a source of a silanol, alkoxysilane, such as silanol compounds, such as a triphenylsilanol and a diphenyldihydroxysilane, diphenyldimethoxysilane, a tetramethoxy silane, and methyl trimethoxysilane, can be mentioned, for example.

[0163]Although various the amount of [in case used of using a source compound of a silanol] can be set up. A minimum of a desirable addition to a coupling agent or/, and epoxy compound epoxy compound 100 weight section is one weight section more preferably 0.1 weight sections, and maximums of a desirable addition are 30 weight sections more preferably 50 weight sections. If there are few additions, the adhesive improvement effect will not appear, but if there are many additions, it may have an adverse effect on hardened material physical properties.

[0164]These source compounds of a silanol may be used alone, and may be used together two or more sorts.

(Thermosetting resin) It is the purpose of reforming the characteristic to encapsulant of this invention, and it is also possible to add various thermosetting resin. As thermosetting resin, although an epoxy resin, a cyanate ester resin, phenol resin, polyimide resin, urethane resin, a bismaleimide resin, etc. are illustrated, it is not limited to this. A viewpoint of excelling in the practical use characteristics, such as an adhesive property, to an epoxy resin is [among these] preferred.

[0165]As an epoxy resin, for example A novolac phenol type epoxy resin, A biphenyl type epoxy resin, dicyclopentadiene type epoxy resin, Bisphenol F diglycidyl ether, bisphenol A diglycidyl ether, 2,2'-bis(4-glycidyloxy cyclohexyl)propane, 3,4-epoxycyclohexylmethyl 3,4-epoxy cyclohexane carbo KISHIRETO, Vinylcyclohexene dioxide, 2-(3,4-epoxycyclohexyl)-5,5-spiro(3,4-epoxy cyclohexane)-1,3-dioxane, A bis (3,4-epoxycyclohexyl)horse mackerel peat, screw 1,2-cyclopropanedicarboxylate glycidyl ester, Triglycidyl isocyanurate, monoallyl diglycidyl isocyanurate, What stiffens epoxy resins, such as diaryl monoglycidyl isocyanurate, with aliphatic acid anhydrides, such as hexahydro phthalic anhydride, methylenhexahydrophthalic anhydride, trialkyl tetrahydro phthalic anhydride, and a hydrogenation methyl

NAJIKKU acid anhydride, is mentioned. These epoxy resins or hardening agents may be used independently, respectively, or may combine two or more things.

[0166]thermosetting resin — an addition — ***** — especially — limitation — there is nothing — although — it is desirable — the amount used — a minimum — hardenability — a constituent — the whole — five — % of the weight — more — desirable — ten — % of the weight — it is — it is desirable — the amount used — a maximum — hardenability — a constituent — inside — 50 — % of the weight — more — desirable — 30 — % of the weight — it is . An effect which will be made into the purposes, such as an adhesive property, if there are few additions is hard to be acquired, and if there are many additions, it will be easy to become weak.

[0167]These thermosetting resin may be used independently or may combine two or more things.

[0168]It may melt in the (A) ingredient or/, and the (B) ingredient, and may mix as a uniform state, resin raw materials or/, and a stiffened thing may be ground, and it may mix by a particle state, it melts and mixes to a solvent, and heat-curing resin is good also as a dispersion state. In a point that a hardened material obtained becomes transparent easier, it is preferred to melt in the (A) ingredient or/, and the (B) ingredient, and to mix as a uniform state. Also in this case, thermosetting resin may be directly dissolved in the (A) ingredient or/, and the (B) ingredient, and it may mix uniformly using a solvent etc., and is good also as a uniform dispersion state or/, and the mixed state except for a solvent after that.

[0169]When making it distribute and using thermosetting resin, various mean particle diameter can be set up, but a minimum of desirable mean particle diameter is 10 nm, and a maximum of desirable mean particle diameter is 10 micrometers. Although there may be distribution of a particle system, and it may be single distribution or may have two or more peak particle sizes, from a viewpoint that viscosity of a hardenability constituent becomes it is low and good [a moldability] easily, it is preferred that a coefficient of variation of particle diameter is 10% or less.

(Thermoplastics) It is the purpose of reforming the characteristic to encapsulant of this invention, and it is also possible to add various thermoplastics. Although various things can be used as thermoplastics, for example, a homopolymer of methyl methacrylate or randomness of methyl methacrylate and other monomers, Polymethylmethacrylate system resin, such as a block or a graft polymer (for example,

OPUTORETSU by Hitachi Chemical Co., Ltd., etc.), A homopolymer of butyl acrylate, or randomness of butyl acrylate and other monomers, Acrylic resin represented by poly butyl acrylate system resin, such as a block or a graft polymer, etc., Polycarbonate system resin, such as polycarbonate resin which contains bisphenol A, a 3,3,5-trimethyl cyclohexylidene bisphenol, etc., as a monomer structure (for example, APEC by Teijin, Ltd., etc.), A norbornene derivative, a vinyl monomer, etc. Resin which it was independent or carried out copolymerization, Cycloolefin system resin, such as resin to which the ring opening methathesis of the norbornene derivative was carried out, or its hydrogenation thing. Olefin maleimide system resin (for example, TI-PAS by TOSOH CORP., etc.), such as (for example, APEL by Mitsui Chemicals, Inc., ZEONOR by Nippon Zeon Co., Ltd., ZEONEX, ARTON by JSR, etc.), ethylene, and a copolymer of maleimide, bisphenol A, Diol, terephthalic acid, such as bisphenols, such as a bis(4-(2-hydroxyethoxy) phenyl)fluorene, and a diethylene glycol, Polyester system resin, such as polyester to which the polycondensation of phthalic acid and aliphatic dicarboxylic acid, such as isophthalic acid, was carried out (for example, O-PET by Kanebo, Ltd., etc.), Polyether sulfone resin, polyarylate resin, polyvinyl-acetal resin. Although crude rubber and rubber-like resin called EPDM besides being polyethylene resin, polypropylene resin, polystyrene resin, polyamide resin, silicone resin, a fluoro-resin, etc. are illustrated, it is not limited to this.

[0170]As thermoplastics, it may have a carbon-carbon double bond or/, and a SiH group which have a SiH group and reactivity in a molecule. In a point that a hardened material obtained becomes tougher easily, it is preferred to average a carbon-carbon double bond or/, and a SiH group which have a SiH group and reactivity in a molecule, and to have in [one or more] one molecule.

[0171]As thermoplastics, it may have other cross-linking groups. As a cross-linking group in this case, an epoxy group, an amino group, a radical polymerization nature unsaturation group, a carboxyl group, an isocyanate group, hydroxyl, alkoxy silyl groups, etc. are mentioned. In a point that the heat resistance of hardened material obtained becomes high easily, it is preferred to average a cross-linking group and to have in [one or more] one molecule.

[0172]As a molecular weight of resin made from heat plasticity, although there is no limitation in particular, in a point that compatibility with the (A) ingredient or the (B) ingredient becomes good easily, it is preferred that a number average molecular weight is 10000 or less, and it is more preferred that it is 5000 or less. On

the contrary, in a point that a hardened material obtained becomes tough easily, it is preferred that a number average molecular weight is 10000 or more, and it is more preferred that it is 100000 or more. In a point that viscosity of a mixture becomes low and a moldability becomes good easily although there is no limitation in particular also about molecular weight distribution, it is preferred that molecular weight distribution is three or less, it is more preferred that it is two or less, and it is still more preferred that it is 1.5 or less.

[0173]thermoplastics — loadings — ***** — especially — limitation — there is nothing — although — it is desirable — the amount used — a minimum — hardenability — a constituent — the whole — five — % of the weight — more — desirable — ten — % of the weight — it is — it is desirable — the amount used — a maximum — hardenability — a constituent — inside — 50 — % of the weight — more — desirable — 30 — % of the weight — it is . A hardened material which will be obtained if there are few additions becomes weak easily, and if large, heat resistance (elastic modulus in an elevated temperature) will become low easily.

[0174]A single thing may be used as thermoplastics and it may use combining two or more things.

[0175]It may melt in the (A) ingredient or/, and the (B) ingredient, and may mix as a uniform state, and it may grind, may mix by a particle state, it melts and mixes to a solvent, and thermoplastics is good also as a dispersion state. In a point that a hardened material obtained becomes transparent easier, it is preferred to melt in the (A) ingredient or/, and the (B) ingredient, and to mix as a uniform state. Also in this case, thermoplastics may be directly dissolved in the (A) ingredient or/, and the (B) ingredient, and it may mix uniformly using a solvent etc., and is good also as a uniform dispersion state or/, and the mixed state except for a solvent after that.

[0176]When making it distribute and using thermoplastics, various mean particle diameter can be set up, but a minimum of desirable mean particle diameter is 10 nm, and a maximum of desirable mean particle diameter is 10 micrometers. Although there may be distribution of a particle system, and it may be single distribution or may have two or more peak particle sizes, from a viewpoint that viscosity of a hardenability constituent becomes it is low and good [a moldability] easily, it is preferred that a coefficient of variation of particle diameter is 10% or less.

(Bulking agent) A bulking agent can also be added to encapsulant of this invention.

[0177]Although various kinds of things are used as a filler, for example, quartz, fume silica, sedimentation nature silica, a silicic acid anhydride, fused silica, Silica system fillers, such as crystalline silica and superfines amorphous silica, silicon nitride, Silver dust, alumina, aluminum hydroxide, titanium oxide, glass fiber, carbon fiber, Inorganic fillers, such as mica, carbon black, graphite, diatomite, clay, talc, calcium carbonate, magnesium carbonate, barium sulfate, and an inorganic balloon, are made into the start. Generally use or/, a filler proposed, etc. can be mentioned as a filler of the conventional sealing agents, such as an epoxy system.

[0178]From a viewpoint of being hard to give a damage as a filler to a semiconductor and an electronic industry material to close, it is preferred that it is low radiation nature.

[0179]The surface treatment of the filler may be carried out suitably. As a surface treatment, alkylation processing, trimethylsilylation processing, siliconization, processing by a coupling agent, etc. are mentioned.

[0180]A silane coupling agent is mentioned as an example of a coupling agent in this case. It will not be limited especially if it is a compound which has respectively an organic group, an existing reactant functional group, and at least one silicon group of hydrolysis nature in a molecule as a silane coupling agent. As an organic group and an existing reactant basis, an epoxy group from a point of handling nature, an methacrylic group, At least one functional group chosen from an acrylic group, an isocyanate group, an isocyanurate group, a vinyl group, and a carbamate group is preferred, and an epoxy group, an methacrylic group, and especially an acrylic group are preferred from hardenability and an adhesive point. As a silicon group of hydrolysis nature, a point of handling nature to alkoxy silyl groups is preferred, and especially a methoxy silyl group and ethoxy silyl group is preferred from a reactant point.

[0181]As a desirable silane coupling agent, 3-glycidoxypolytrimethoxysilane, 3-glycidoxypolytriethoxysilane, 2-(3, 4-epoxycyclohexyl) ethyltrimethoxysilane. The alkoxy silane which has epoxy functional groups, such as 2-(3,4-epoxycyclohexyl) ethyltriethoxysilane : 3-methacryloxy propyl trimethoxysilane, 3-methacryloxypropyl triethoxysilane, 3-acryloxypropyltrimethoxysilane, 3-acryloxypropyltriethoxysilane, meta-KURIKISHI methyl trimethoxysilane, The alkoxy silane which has an

methacrylic group or acrylic groups, such as meta-KURIROKISHI methyl triethoxysilane, acryloxy methyl trimethoxysilane, and acryloxy methyl triethoxysilane, can be illustrated.

[0182]In addition, a method of adding a filler is mentioned. For example, a hydrolytic silane monomer or oligomer, such as alkoxysilane, an acyloxy silane, and halogenation Silang. A method of adding to a constituent of this invention, making an alkoxide of metal, such as titanium and aluminum, reed ROKISHIDO, a halogenide, etc. reacting in a constituent or a partial reactant of a constituent, and making a filler generating in a constituent can also be mentioned.

[0183]From a viewpoint that are hard to check a hardening reaction among the above fillers, and the reduction effect of a coefficient of linear expansion is large, a silica system filler is preferred.

[0184]In a point that perviousness to a slit of a sealing agent becomes good easily as mean particle diameter of a filler, it is preferred that it is 10 micrometers or less, and it is more preferred that it is 5 micrometers or less.

[0185]If a particle with a particle diameter of not less than 50 micrometers of a filler carries out comparatively, in a point that perviousness to a slit of a sealing agent becomes good easily, it is preferred that it is 1 or less % of the weight, and it is more preferred that it is 0.1 or less % of the weight.

[0186]About particle size distribution of a filler, as a filler of the conventional sealing agents, such as an epoxy system, use or/, and a thing proposed are begun, and various setting out of it can be carried out. For example, it may be made for a particle (15 % of the weight or more and 1 micrometer or less) to be 3 % of the weight or more in a not less than 24-micrometer particle.

[0187]A rate of a with mean particle diameter of a filler and a particle diameter [of a filler] of not less than 50 micrometers particle can be measured using a laser method micro track grading analysis meter.

[0188]Also with specific surface area of a filler, as a filler of the conventional sealing agents, such as an epoxy system, use or/, and a thing proposed are begun, and various setting out of it can be carried out. For example, more than $4\text{-m}^2/\text{g}$ can set up below $4\text{-m}^2/\text{g}$ and below $10\text{-m}^2/\text{g}$ arbitrarily.

[0189]Specific surface area can be measured with a BET adsorption method mono- SOBU surface area measuring instrument.

[0190]Also with a vitrification rate of a filler, as a filler of the conventional sealing agents, such as an epoxy system, use or/, and a thing proposed are begun, and various setting out of it can be carried out. For example, it can set up arbitrarily not less than 97 etc.% etc.

[0191]As shape of a filler, it is preferred that it is a spherical filler from a viewpoint to which viscosity of a sealing agent becomes low easily.

[0192]A filler may be used alone and may be used together two or more sorts.

[0193]Although an addition in particular of a filler is not limited, the reduction effect of a coefficient of linear expansion is high, and — encapsulant — mobility — being good — saying — a viewpoint — from — it is desirable — an addition — a minimum — all — encapsulant — inside — 30 — % of the weight — more — desirable — 50 — % of the weight — it is — it is desirable — an addition — a maximum — all — encapsulant — inside — 80 — % of the weight — more — desirable — 70 — % of the weight — it is .

(Antianging agent) An antianging agent may be added to encapsulant of this invention. As an antianging agent, an antianging agent generally used, for example, citrate and phosphoric acid, a sulfur-systems antianging agent, etc. are mentioned. As a sulfur-systems antianging agent, mercaptans, salts of mercaptan, Sulfide carboxylate and the sulfides containing hindered phenol system sulfides. Polysulfide, dithiocarboxylic acid salts, thiourea, thio phosphate, a sulfonium compound, thioaldehydes, thioketones, mercaptal, mercaptol, monothio acid, polythio acid, thioamides, and sulfoxides are mentioned.

[0194]These antianging agents may be used alone and may be used together two or more sorts.

(Radical inhibitor) Radical inhibitor may be added to encapsulant of this invention. As radical inhibitor, for example 2,6-di-*t*-butyl-3-methyl phenol (BHT), A 2,2'-methylene-screw (4-methyl-6-*t*-butylphenol), Phenol system radical inhibitor, such as tetrakis (methylene-3 (3,5-di-*t*-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate) methane, Amine system radical inhibitor, such as phenyl-beta-naphthylamine, alpha-naphthylamine, the N,N'-second butyl-*p*-phenylene diamine, phenothiazin, and N,N'-diphenyl-*p*-phenylene diamine, etc. are mentioned.

[0195]These radical inhibitor may be used alone and may be used together two or more sorts. (Ultraviolet ray absorbent) An ultraviolet ray absorbent may be added to encapsulant of this invention. As an ultraviolet ray absorbent, 2 (2'-hydroxy-3',5'-di-*t*-butylphenyl) benzotriazol, bis(2,2,6,6-tetramethyl 4-

piperidine)sebacate, etc. are mentioned, for example.

[0196]These ultraviolet ray absorbents may be used alone and may be used together two or more sorts. (In addition to this additive agent) In addition to this in encapsulant of this invention, use or/, and a thing proposed are begun as a filler of the conventional sealing agents, such as an epoxy system, Colorant, a release agent, fire retardant, a fire-resistant auxiliary agent, a surface-active agent, a thixotropic agent, an emulsifier, A leveling agent, a crawling inhibitor, an ion trap agent, a thixotropic grant agent, A tackifier, a preservation stable improving agent, anti-ozonant, light stabilizer, a thickener, In a range which does not spoil the purpose and an effect of this invention, a plasticizer, reactive diluent, an antioxidant, a heat stabilizing agent, an electro-conductivity applying agent, a spray for preventing static electricity, a radiation interception agent, a nucleating additive, the Lynn system peroxide decomposition agent, lubricant, paints, a metal deactivator, a thermally conductive grant agent, a physical-properties regulator, etc. can be added. (Solvent) Encapsulant of this invention can also be dissolved and used for a solvent. If a solvent in particular that can be used is not limited and is illustrated concretely, Hydrocarbon system solvents, such as benzene, toluene, hexane, and heptane, a tetrahydrofuran, Halogen system solvents, such as ketone solvent [such as ether system solvents, such as 1, 4-dioxane, 1,3-dioxolane, and diethylether, acetone, methyl ethyl ketone, and methyl isobutyl ketone,], chloroform, methylene chloride, 1, and 2-dichloroethane, can be used conveniently.

[0197]As a solvent, toluene, a tetrahydrofuran, 1,3-dioxolane, and chloroform are preferred.

[0198]Although the amount of solvents to be used can be set up suitably, minimums of the desirable amount used to the hardenability constituent 1g to be used are 0.1mL, and maximums of the desirable amount used are 10mL. An effect of using solvents, such as hypoviscosity-izing, if there is little amount used is hard to be acquired, and if there is much amount used, a solvent will remain into material and it will be easy to become problems, such as a heat crack, and it becomes in cost and disadvantageous, and industrial-utilizations value falls.

[0199]These solvents may be used alone and can also be used as two or more kinds of mixed solvents. (Encapsulant description) As encapsulant of this invention, as described above, can use a thing of various combination, but. In a point that restoration nature to a slit is good, as viscosity of encapsulant, it is preferred in 23 ** that they are 1000 or less Pa-s, it is more preferred that they are 10 or less Pa-s, and they are less than 5.0 Pa-s — further — this — better — it is preferred that they are especially ** and 1.0 Pa-s or less, and it is preferred that it is especially 0.1 or less. It is preferred that it is below 10 Pa and s in 100 ** for the same reason, it is more preferred that it is 1.0 or less Pa-s, and it is still more preferred that it is 0.1 or less Pa-s.

[0200]Various things can be used also about the temperature dependence (thixotropy) of viscosity.

[0201]Viscosity can be measured with E type viscosity meter.

[0202]It is preferred that penetration time to the 50-micrometer crevice at 23 ** is 600 or less seconds/cm as an infiltration speed to a crevice, and it is more preferred that it is 120 or less seconds/cm. It is preferred that penetration time to the 25-micrometer crevice at 23 ** is 600 or less seconds/cm, and it is more preferred that it is 180 or less seconds/cm. It is preferred that penetration time to the 50-micrometer crevice at 60 ** is 120 or less seconds/cm, and it is more preferred that it is 60 or less seconds/cm. It is preferred that penetration time to the 25-micrometer crevice at 60 ** is 180 or less seconds/cm. It is preferred that penetration time to the 25-micrometer crevice at 60 ** is 180 or less seconds/cm, and it is more preferred that it is 120 or less seconds/cm. It is preferred that penetration time to the 50-micrometer crevice at 100 ** is 60 or less seconds/cm, and it is more preferred that it is 30 or less seconds/cm. It is preferred that penetration time to the 25-micrometer crevice at 100 ** is 120 or less seconds/cm, and it is more preferred that it is 60 or less seconds/cm.

[0203]Penetration time to a crevice is measured by a following method. As shown in drawing 1, on a glass plate, separate an aluminum foil spacer (50 micrometers in thickness, or 25 micrometers) of two sheets 15 mm, and it is arranged in parallel. After loading a cover glass of 18-mm width so that it may straddle in the meantime, a glass plate, an aluminum foil spacer, and a cover glass are fixed with adhesive tape. Thus, space (15mmx18mmx50micrometer or 25 micrometers) is prepared with a glass plate, aluminum foil, and a cover glass. As shown in drawing 1, after settling this thing on a hot plate, adjusting to preset temperature, and hanging down encapsulant to one side of a crevice, time until encapsulant which permeated a 1-cm position from one of them reaches is measured, and it is considered as crevice penetration time.

[0204]Although it can set up arbitrarily about the hardenability of encapsulant, it is preferred that gel time at 120 ** is less than 120 seconds, and it is more preferred that it is less than 60 seconds. It is preferred

that gel time at 150 ° is less than 60 seconds, and it is more preferred that it is less than 30 seconds. It is preferred that gel time at 100 ° is less than 180 seconds, and it is more preferred that it is less than 120 seconds. When hardenability is late, workability as encapsulant worsens. Conversely, when quick, storage stability may worsen easily.

[0205]Gel time in this case is investigated as follows. 50-μm-thick aluminum foil is placed on a hot plate adjusted to preset temperature, time until it hangs down and gels 100 mg of encapsulant on it is measured, and it is considered as gel time.

(Hardenability) It can mix beforehand, and encapsulant of this invention can be stiffened a part of SiH group in a hardenability constituent, carbon-carbon double bond which has reactivity, SiH group, or by making *** all react, and can be used as a material for a semiconductor device.

[0206]When making encapsulant react and making it harden, (A), (B), (C), (D) A method of mixing a back residue to which mixed and a part was made to react, and making it react further, although it may mix at once and an initial complement of each ingredient may be made to react. After mixing and making a part of functional group in a constituent react by control of a reaction condition, or use of a reactant difference of a substituent (formation of B stage), a method of processing shaping etc. and stiffening further can also be taken. According to these methods, viscosity control at the time of shaping becomes easy.

[0207]It can also be made to be able to react only by mixing as a method of stiffening, and can also be made to heat and react. A reaction is quick and a method of making it heat and react from a viewpoint that a heat-resistant high material is generally easy to be obtained is preferred.

[0208]Although many things can be set up as curing temperature, 30 ° of minimums of a desirable temperature are 100 ° more preferably, and 300 ° of maximums of a desirable temperature are 200 ° more preferably. If reaction temperature is low, reaction time for making it fully react will become long, and if reaction temperature is high, a fabricating operation will become difficult easily.

[0209]Although hardening may be performed at a fixed temperature, a multi stage story or per-continuum temperature may be changed if needed. rather than carrying out at a fixed temperature — a multi stage story — in a point that a uniform hardened material made it more distorted [to react] raising temperature-like or continuously and which is not is easy to be obtained, it is desirable.

[0210]Although various cure time can also be set up, it is more desirable in a point that a uniform hardened material made it more distorted [to react by a low-temperature long time comparatively] and which is not is easy to be obtained than making it react in an elevated-temperature short time.

[0211]A pressure of reaction time can also be set up variously if needed, and it can also be made to react by ordinary pressure, high voltage, or a reduced pressure state. In a point which is easy to remove volatile matter content generated by a case that restoration nature to details is good, it is preferred to make it harden by a reduced pressure state.

[0212]In a viewpoint of being hard to produce generating of a void to inside of encapsulant, and a problem of a process by outgas from encapsulant in a manufacturing process for which encapsulant is used. It is preferred that weight loss under hardening is 5 or less % of the weight, it is more preferred that it is 3 or less % of the weight, and it is still more preferred that it is 1 % or less.

[0213]Weight loss under hardening is investigated as follows. Using a thermo gravity analysis apparatus, from a room temperature to 150 °, temperature up of 10 mg of the encapsulant can be carried out, an initial mass of weight which decreased can carry out it comparatively, and it can ask for it with 10 ° the heating rate for /.

[0214]In a point of being hard to cause a problem of silicone contamination to an electronic industry material, it is preferred that content of Si atom in a volatile constituent in this case is 1 % or less.

(Hardened material description) In a point that encapsulant of this invention is high elongation and heat-resistant stress nature becomes high, it is preferred that *** elongation after fracture of a hardened material produced by making harden encapsulant is not less than 2 %, it is more preferred that it is not less than 3 %, and it is still more preferred that it is not less than 4 %, it is preferred that it is especially not less than 5 %, and it is most preferred that it is not less than 10 %.

[0215]*** elongation after fracture can be measured by the following methods. A 6x5x3-mm strip of paper is cut down from a 3-mm-thick board-like ghost, and U notch with an r= 1.0-mm depth of 1 mm is minced from both sides near the center of a long side direction, and it is considered as a specimen like drawing 2. Distance between zippers shall be 15 mm, using an autograph placed under environment of 23 °±50 %RH, it faces across the both ends by a zipper so that U notched part of a specimen may become

near the center between zippers, and a tensile test is done speed for 1-mm/. Displacement until a specimen at this time fractures is *(ed) in distance between zippers, and let it be *** elongation after fracture.

[0216]That from which Tg of a hardened material in which heat resistance is obtained by stiffening encapsulant from a viewpoint of being good will be not less than 100 ° is preferred, and a thing used as not less than 150 ° is more preferred.

[0217]On the other hand, it is low stress, and that whose Tg of a hardened material produced by making harden encapsulant from a viewpoint that heat-resistant stress nature is high is less than 100 ° is preferred, and what is 80 ° or less is more preferred. In this case, Tg is investigated as follows. Peak temperature of tandelta of dynamic viscoelasticity measurement (JT measurement control company make DVA-200 use) which was pulled using a prismatic specimen of 3mmx5mmx30mm, and was measured on condition of for mode, 10 Hz of test-frequencies, 0.1 % of distortion, ° / power ratio 1.5, and degree/of 5 ° of temperature-up side is set to Tg.

[0218]In a point that reliability becomes being hard to produce in wiring etc. which were closed when used as encapsulant highly in problems, such as ion migration, it is preferred that extraction ion content from a hardened material is less than 10 ppm, it is more preferred that it is less than 5 ppm, and it is still more preferred that it is less than 1 ppm.

[0219]In this case, extraction ion content is investigated as follows. With 50 ml of ultrapure water, the cut-out hardened material Tg is put into a container made from Teflon (R), and is sealed, and it processes on 121 °, 2 atmospheres, and conditions of 20 hours. An obtained extract is converted into concentration in a hardened material using a value of content of Na and K which were obtained by analyzing by an ICP mass analysis (Yokogawa Analytical Systems, Inc. make HP-4500 use), and it asks for it. On the other hand, the same extract is converted into concentration in a hardened material using a value of content of Cl and Br which were obtained by analyzing by the ion chromatography method (product DXI made by die ONEKUSU)-500 use, column/AS12-SC), and it asks for it. Content in a hardened material of Na, K, Cl, and Br which were obtained as mentioned above is totaled, and it is considered as extraction ion content. (Candidate for closure) A semiconductor, electronic parts, an electronic circuit, or electric contact can be closed using encapsulant of this invention.

[0220]It sees, although usual silicon was used as a base as a semiconductor, and there is nothing then and what used various metal, such as gallium, indium, germanium, and zinc, as a base is included. In addition, an organic semiconductor is also included. Light emitting devices which are a transistor, resistance, a diode, etc. as an element, such as others and a light emitting diode and a semiconductor laser, photo detectors, such as a various sensor, a solar cell, etc. are included. Various ICs, such as a memory and a logic circuit, LSI, etc. are contained. A thing of a thing (ball semiconductor) of fineness and ball state besides a thing of plate-like [as shape of a semiconductor / usual] and block like shape, etc. are contained. A large-sized thing like 25 mm squares from an applicable for example, small thing like 0.3 mm squares or 100 mm squares may be variously used also about a semiconductor size. In addition, it can set up suitably also about connection parts, such as protective films, such as a passivation film provided on a semiconductor, a solder bump, a gold bump, an aluminum pad.

[0221]Others and automobile circumference electronic parts, liquid crystal circumference electronic parts, cell circumference electronic parts, organic electroluminescence (electroluminescence) circumference electronic parts, optical recording circumference electronic parts, etc. which are a rye backed lance, a capacitor, etc. as electronic parts are included. As automobile circumference electronic parts, electronic parts for various electronic control, such as an ignition coil and fuel supply, a gauge part article, a lighting part, etc. are mentioned, for example. As liquid crystal circumference electronic parts, others and a liquid crystal display which are light polarizer, a light filter, a transistor of TFT, a transparent conducting film, a liquid crystal, etc. are also contained, for example. As cell circumference electronic parts, a solar cell substrate, a lithium ion battery, a fuel cell, etc. are mentioned, for example. An organic electroluminescence board etc. are mentioned as organic electroluminescence (electroluminescence) circumference electronic parts. As optical recording circumference electronic parts, disc substrates VD (video disk), CD/CD-ROM, CD-R/RW, DVD-R/DVD-RAM, MO/MD, PD (phase change disk), for optical cards, etc., a light-emitting component, a pickup lens, a light sensing portion article, etc. are mentioned.

[0222]As an electric circuit, other photoelectron circuits of a rigid printed circuit board, a flexible printed circuit board, and a build up board, etc. are mentioned.

[0223]As electric contact, a node of a substrate and a cable, a node of a cable and a cable or a node of substrates, a node of a substrate and an element, a node of a cable and an element, etc. are mentioned. (Sealing method) A method of closing can also take various methods including use of, and a thing proposed as a sealing method of the conventional sealing agents, such as an epoxy system. For example, it can also close by casting, potting, dipping, a press, coating, or screen-stencil, and molding closure can also be carried out like a transfer mold. After carrying out dispensing, it can close also by a method (under-filling) of making it permeate a crevice.

[0224]Various processing can also be performed if needed at the time of closure. For example, processing etc. which deform encapsulant or encapsulant made to react in part with centrifugality, decompression, etc. for control of a void generated at the time of closure are also applicable, and it can also deform, after closing.

[0225]Various pressure conditions at the time of closing can also be set up, and any method of ordinary pressure, decompression, and application of pressure can be applied. It is [being / where crevices, such as under-filling, are made to permeate / a case, and] sometimes effective to carry out by decompression to improve perviousness to a detailed part. Regularity may be sufficient as a pressure and it may change continuation or a stage target to a target with the passage of time if needed.

[0226]Various temperature in a case of closing can also be set up, a case where crevices, such as under-filling, are made to permeate, and a case where he would like to improve perviousness to a detailed part — warming — it is sometimes effective to carry out in the state. In this case, for example, temperature of 50 °C — 200 °C is applicable. Regularity may be sufficient as temperature and it may change continuation or a stage target to a target with the passage of time if needed.

(Example of encapsulant) Although a concrete example of encapsulant is given to below, encapsulant of this invention is not limited to this.

[0227]As encapsulant of a semiconductor, a capacitor, a transistor, a diode, A light emitting diode, IC, LSI, a sensor, etc. Casting, potting, Encapsulant for closing by dipping, a transfer mold, coating, screen-stencil, etc. is mentioned. More specifically COB(s), such as a light emitting diode, IC, LSI, and a sensor, Potting encapsulants, such as COF and TAB, under-filling of a flip chip (a capillary tube flow type and a compression flow type), Encapsulant at the time of IC package mounting of BGA, CSP, etc. (under-filling for reinforcement), encapsulant for stacked IC, encapsulant for the wafer levels CSP, etc. can be mentioned. In addition, various protective films used for a semiconductor previous process, such as a passivation film, a junction coat film, and a buffer coat film, are also the examples of encapsulant of a semiconductor.

[0228]As encapsulant of electronic parts, a deflection plate, a light filter, a transistor of TFT, A protective coating agent of a transparent conducting film and a liquid crystal display, and encapsulant of a liquid crystal with which a cell was filled up, a protective coating agent of a solar cell, encapsulant of a lithium ion battery or a fuel cell, a protective coating agent of organic electroluminescence (electroluminescence), a light source for optical recording, and a coating agent of a photo detector and encapsulant — a protective coating agent of the electronic-parts circumference of a car and encapsulant are also mentioned further. [0229]As encapsulant of an electronic circuit, a solder resist of rigid printed circuit board and flexible printed circuit board material and a build up board, a protective coating agent, etc. are mentioned. [0230]As encapsulant of electric contact, contact protection (coating) agents, such as a substrate, an element and a substrate, a substrate and a substrate, and a cable, a junction coating agent, etc. are mentioned.

(Semiconductor device) A semiconductor device can be manufactured by closing a semiconductor by a method which was described above using encapsulant of this invention. In this case, what is necessary is to use it for a use which described encapsulant of this invention above, and just to manufacture a semiconductor device by a usual method.

[0231]A semiconductor device is a device containing various semiconductors, for example, generally DIP, QFP, SOP, TSOP, PGA, CSP, BGA, FCBGA using PI resin, ceramics, BT resin, or FR4 grade several-kinds substrate, Calling [QFN, COB, COF, TAB, the wafer level CSP, a stacked package, BCC, MCM, SIP, etc.] various IC packages, a light emitting diode part article, an optical sensor section article and a substrate in which they were carried, a module, etc. are mentioned.

[0232]

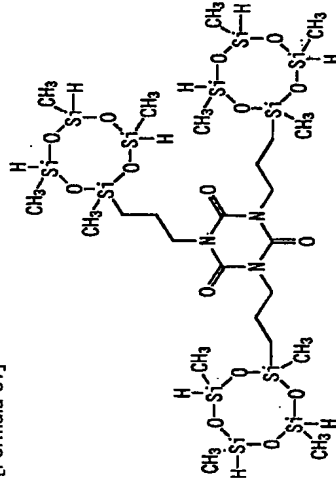
[Example]This invention is not limited by the following although the example and comparative example of

this invention are shown below.

(Synthetic example 1) Agitating equipment, the tap funnel, and the condenser tube were set to the 4 mouth flask of 5L. The toluene 1800g, 1, 3, and 5 and 1440 g of 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane were put into this flask, and it heated and stirred in a 120 °C oil bath. The mixed liquor of 1.44 ml of xylene solutions (3wt% as platinum content) of 200 g of triallyl isocyanurate, 200g of toluene, and a platinum vinyl siloxane complex was dropped over 50 minutes. After warming and stirring the obtained solution as it was for 6 hours, decompression distilling off of unreacted 1,3,5,7-tetramethyl cyclotetrasiloxane and toluene was carried out. It turned out that, as for this thing, a part of SiH group of 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane reacts to triallyl isocyanurate by ¹H-NMR (the reactant A is called). When 1,2-dibromomethane was used for the internal standard and the content of the SiH group was calculated by ¹H-NMR, it turned out that the SiH group of 8.08 mmol/g is contained. Although output is a mixture, the following which are the (B) ingredient of this invention are contained as the main ingredients. The platinum vinyl siloxane complex which is the (C) ingredient of this invention is contained.

[0233]

[Formula 37]

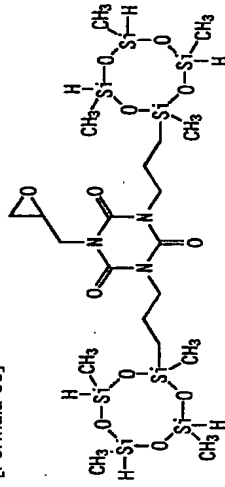


(Synthetic example 2) Agitating equipment, the tap funnel, and the condenser tube were set to the 4 mouth flask of 5L. The toluene 1800g, 1, 3, and 5 and 1356 g of 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane were put into this flask, and it heated and stirred in a 105 °C oil bath. The mixed liquor of 1.36 ml of xylene solutions (3wt% as platinum content) of 300 g of diaryl monoglycidyl isocyanurate, 300g of toluene, and a platinum vinyl siloxane complex was dropped over 30 minutes. After warming and stirring the obtained solution as it was for 1 hour, decompression distilling off of unreacted 1,3,5,7-tetramethyl cyclotetrasiloxane and toluene was carried out. It turned out that, as for this thing, a part of SiH group of 1,3,5,7-tetramethyl

cyclotetrasiloxane reacts to diaryl monoglycidyl isocyanurate by ¹H-NMR (the reactant B is called). When 1,2-dibromomethane was used for the internal standard and the content of the SiH group was calculated by ¹H-NMR, it turned out that the SiH group of 8.73 mmol/g is contained. Although output is a mixture, the following which are the (B) ingredient of this invention are contained as the main ingredients. The platinum vinyl siloxane complex which is the (C) ingredient of this invention is contained.

[0234]

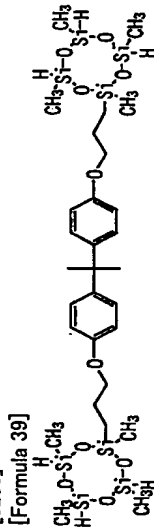
[Formula 38]



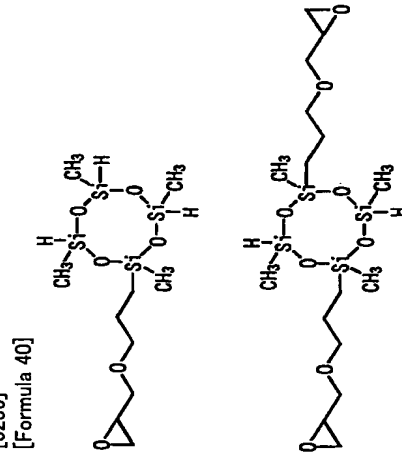
(Synthetic example 3) Agitating equipment, the condenser tube, and the tap funnel were set to the 4 mouth

flask of 1L. Xylene solution (3wt% as platinum content) 15.6microL of 150 g of toluene and a platinum vinyl siloxane complex, 1, 3 and 5, and 500 g of 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane were added to this flask, and it warmed and stirred at 70 °C in the oil bath. 64 g of bisphenol A diaryl ether was diluted with 40 g of toluene, and it was dropped from the tap funnel. It cooled radiationally after 60-minute stirring by the **, and 4.74 mg of benzothiazole was added. Decompression distilling off of unreacted 1,3,5,7-tetramethyl cyclotetrasiloxane and toluene was carried out. It turned out that, as for this thing, a part of SiH group of 1,3,5,7-tetramethyl cyclotetrasiloxane reacts to bisphenol A diaryl ether by $^1\text{H-NMR}$ (the reactant C is called). When 1,2-dibromomethane was used for the internal standard and the content of the SiH group was calculated by $^1\text{H-NMR}$, it turned out that the SiH group of 7.51 mmol/g is contained. Although output is a mixture, the following which are the (B) ingredient of this invention are contained as the main ingredients. The platinum vinyl siloxane complex which is the (C) ingredient of this invention is contained.

[0235]



(Synthetic example 4) The magnetic stirring child, the tap funnel, and the condenser tube were set to the 4 mouth flask of 1L. The toluene 200g, 1, 3, and 5 and 200 g of 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane were put into this flask, and it heated and stirred at 50 °C in the bottom oil bath of a nitrogen atmosphere. Xylene solution (3wt% as platinum content) 31.5microl of the allyl glycidyl ether 95.0g and a platinum vinyl siloxane complex and the mixture of 50 g of toluene were dropped over 30 minutes from the tap funnel. After heating by the 50 °C for 1 hour, decompression distilling off of unreacted 1, 3 and 5, 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, and the toluene was carried out. It turned out that a part of SiH group of 1, 3, 5, and 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane carries out the hydrosilylation reaction of this thing with allyl glycidyl ether by ¹H-NMR (the reactant D is called). When 1,2-dibromomethane was used for the internal standard and the content of the SiH group was calculated by ¹H-NMR, it turned out that the SiH group of 6.63 mmol/g is contained. Although output is a mixture, the following which are the (B) ingredient of this invention are contained as the main ingredients. The platinum vinyl siloxane complex which is the (C) ingredient of this invention is contained.



(Examples 1-10, comparative example 1) Various kinds of organic compounds which contain the carbon-carbon double bond which has a SiH group and reactivity in [at least two] one molecule are used as a (A) ingredient, (B) Encapsulant was created by the combination shown in the table using reactant A-E compounded in the synthetic examples 1-5 as an ingredient, using a platinum vinyl siloxane complex as a

http://www4.ipdl.inp.it/go.ip/cgi-bin/tranweb.cgi/eije?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inp.it/go... 2008/03/06

(C) ingredient.

[0237] Viscosity, crevice penetration time, the weight loss under hardening, gel time, and an adhesive property were measured using such encapsulants.

[0238] Such encapsulants were put into the ointment can so that it might become a depth of 3 mm, and it heated gradually by the curing conditions shown in the table, and the hardened material was obtained. **** elongation after fracture, Tg, and extraction ion content were measured using this hardened material.

[0239]

[Table 1]

[illegible]

Viscosity: The viscosity in 23 ** was measured with E type viscosity meter.

[0240] Crevice penetration time: The aluminum foil spacer was put with the glass plate of two sheets, and the crevice between 50-micrometer thickness 1.8 cm in length was created by 15-mm width like drawing 1. After settling this thing on the hot plate, adjusting to preset temperature, and hanging down encapsulant to one side of a crevice, time until the encapsulant which permeated a 1-cm position from one side reaches was measured.

[0241] Weight loss under hardening: Using the thermo gravity analysis apparatus, from a room temperature

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi/eije?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go... 2008/03/06

to 150 **, temperature up of about 10 mg of the encapsulant was carried out, the initial mass of the weight which decreased carried out it comparatively, and it asked for it with 10 ** the heating rate for /.

[0242]Gel time: 50-micrometer-thick aluminum foil was placed on the hot plate adjusted to preset

temperature, and time until it hangs down and gels about 100 mg of encapsulant on it was measured.

[0243]**** elongation after fracture: A 6x55x3-mm strip of paper was cut down from the 3-mm-thick

board-like ghost, and U notch with an r= 1.0-mm depth of 1 mm was minced from both sides near the

center of a long side direction, and it was considered as a specimen like drawing 2. The distance between

zippers was 15 mm, using the autograph placed under the environment of 23 **50%RH, it faced across the

both ends by the zipper so that U notched part of a specimen might become near the center between

zippers, and the tensile test was done the speed for 1-mm/. Displacement until the specimen at this time

fractures was *(ed) in the distance between zippers, and was made into **** elongation after fracture.

[0244]Pull using the prismatic specimen of Tg3mmx5mmx30mm of a hardened material, and The mode, it

asked with the peak temperature of tandelta of the dynamic viscoelasticity measurement (IT measurement

control company make DVA-200 use) measured on condition of for 10 Hz of test-frequencies, 0.1% of

distortion, ** / power ratio 1.5, and degree/of 5 ** of temperature-up side.

[0245]Extraction ion content: With 50 ml of ultrapure water, about 1 g of cut-out hardened materials were

put into the container made from Teflon (R), and were sealed, and it processed on 121 **, 2 atmospheres.

and the conditions of 20 hours. The obtained extract was converted into the concentration in the hardened

material using the value of the content of Na and K which were obtained by analyzing by an ICP mass

analysis (Yokogawa Analytical Systems, Inc. make HP-4500 use), and it asked for it. On the other hand, the

same extract was converted into the concentration in the hardened material using the value of the content

of Cl and Br which were obtained by analyzing by the ion chromatography method (product DX[made by

die ONEKUSU]-500 use, column:AS12-SC), and it asked for it. The content in the hardened material of

Na, K, Cl, and Br which were obtained as mentioned above was totaled, and it was considered as extraction

ion content.

[0246]Adhesive property: On the glass plate, the created encapsulant was applied to a thickness of 100

micrometers, and heat cure was carried out on 120 **/the conditions of 1 hour. The adhesive property was

investigated by the squares tape method by the method to which the obtained coat is specified JISK5400.

The thing with the mass which separated was made into x, using the mass of 10x10 of 1 mm square as the

squares, and what did not peel at all was made into O.

[0247]It became a hardened material when that with which the 50-micrometer crevice which used such

encapsulants for crevice penetration time measurement was filled up was heated for 10 minutes in 150 **

hot wind oven.

[0248]

[Effect² of the Invention]The encapsulant of this invention has a high adhesive property, and has the

characteristic which are hypoviscosity and low-temperature fast curability and was excellent as

encapsulant. Therefore, the high semiconductor device of practicality can be manufactured using this.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1]It is a perspective view of the jig used for measurement of the penetration time to the crevice concerning this invention.

[Drawing 2]It is a perspective view of the specimen for measuring the *** elongation after fracture of the hardened material produced by making harden the encapsulant concerning this invention.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

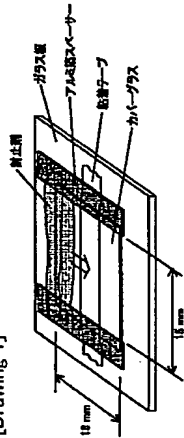
1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

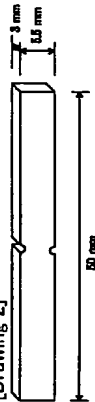
3.In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

[Drawing 1]



[Drawing 2]



[Translation done.]